

BERICHTIGTE FASSUNG



(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
5. Oktober 2000 (05.10.2000)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 00/58396 A1

- (51) Internationale Patentklassifikation⁷: C08K 9/06 (81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AL, AU, BA, BB, BG, BR, CA, CN, CR, CU, CZ, DM, EE, GD, GE, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KP, KR, LC, LK, LR, LT, LV, MA, MG, MK, MN, MX, NO, NZ, PL, RO, RU, SG, SI, SK, SL, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA.
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/01616 (84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- (22) Internationales Anmeldedatum: 26. Februar 2000 (26.02.2000)
- (25) Einreichungssprache: Deutsch
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (30) Angaben zur Priorität: 199 13 810.9 26. März 1999 (26.03.1999) DE
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): QUARZWERKE GMBH [DE/DE]; Kaskadenweg 40, D-50226 Frechen (DE).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): FENTEN, Norbert [DE/DE]; Widdendorfer Strasse 21, D-50189 Elsdorf (DE). WOLF, Wilfried [DE/DE]; Am Maria Born 28a, D-50354 Hürth (DE).
- (74) Anwalt: GODEMEYER, Thomas; Sternagel, Fleischer, Godemeyer & Partner, An den Gärten 7, D-51491 Overath (DE).

Veröffentlicht:

mit internationalem Recherchenbericht

(48) Datum der Veröffentlichung dieser berichtigten Fassung: 11. Oktober 2001

(15) Informationen zur Berichtigung:
siehe PCT Gazette Nr. 41/2001 vom 11. Oktober 2001, Section II

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

TECHNICAL CENTER 1700
RECEIVED

A1

(54) Title: METHOD OF REDUCING THE DUST GENERATION OF SILICATES

WO 00/58396

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR REDUZIERUNG DES STAUBVERHALTENS VON SILIKATEN

(57) Abstract: The invention relates to a method for reducing the dust generation of silicates, according to which the crushed silicate is surface-coated with a polyorganosiloxane. The invention also relates to a silicate with reduced dust generation and to the use of said silicate as reinforcing filler in plastic materials.

(57) Zusammenfassung: Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Reduzierung des Staubverhaltens von Silikaten, wobei das zerkleinerte Silikat mit einem Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet wird. Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Silikat mit reduziertem Staubverhalten sowie die Verwendung des Silikates als verstärkender Füllstoff in Kunststoffen.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Verfahren zur Reduzierung des Staubverhaltens von Silikaten

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Reduzierung des Staubverhaltens von Silikaten. Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Silikat mit reduziertem Staubverhalten.

Silikate, insbesondere nadelförmige Silikate wie beispielsweise Wollastonit, ein Ketten Silikat, werden als verstärkende Füllstoffe für Kunststoffanwendungen eingesetzt.

10

Bei Wollastonit handelt es sich um ein natürliches Calciumsilikat der Formel $\text{Ca}_3[\text{Si}_3\text{O}_9]$. Monokliner Wollastonit besteht aus SiO_4 -Tetraedern, die in Anordnung von Dreierketten der Formel $[\text{Si}_3\text{O}_9]^{6-}$ verbunden sind: Dabei sind die einzelnen Ketten durch Ca^{2+} -Ionen miteinander verbunden. Dies erklärt, weshalb die Partikel des Wollastonits eine nadelförmige Struktur aufweisen können.

Wollastonit besitzt weiterhin vorteilhafte Stoffeigenschaften. Hierzu gehört beispielsweise das Fehlen von chemisch gebundenem Wasser, welches in anderen wasserenthaltenen Silikaten dazu führt, daß sich die Struktur beim Erhitzen durch Wasserverlust verändert. Dies würde im Falle der Einarbeitung in Kunststoffe dazu führen, daß ein verstärkender Effekt nicht mehr erzielt würde. Weitere Vorteile sind der geringe Schrumpfungsgrad beim Trocknen und beim Erhitzen, ein sehr geringer Expansionskoeffizient und gute mechanische Eigenschaften der hergestellten Kunststoffprodukte, die Wollastonit enthalten. Neben der Anwendung als Additiv für Kunststoffe wird Wollastonit auch verwendet zur Herstellung von keramischen Produkten, Sanitärtikeln und Porzellan.

Die vorliegende Erfindung betrifft vorwiegend den Einsatz des Wollastonites in Kunststoffen.

Dabei wird der Wollastonit als Füllstoff hergestellt durch Mahlung des gewonnenen Wollastonites mit nachfolgender Windsichtung. Man erhält dann nadelförmige

ge Wollastonitteilchen, die entweder direkt in die Kunststoffmischung eingearbeitet werden oder in Form von polymeren Vormischungen mit Anteilen von 10 bis 40 Gew. % Wollastonit in die Kunststoffe eingearbeitet werden. Aufgrund der nadelförmigen Struktur des Wollastonites erzielt man eine erhebliche Verbesserung der 5 mechanischen Eigenschaften im Kunststoff und bei den daraus hergestellten Kunststoffformteilen.

Zusätzlich wird gemäß dem Stand der Technik der Wollastonit häufig mit Silanverbindungen beschichtet, um eine bessere Einbindung in das Kunststoffmaterial 10 zu erzielen. Dabei werden beispielsweise Oberflächenbeschichtungen mit Aminosilan, Epoxysilan, Methacrylsilan, Trimethylsilan, Vinylsilan oder Alkylsilan vorgenommen.

Diese Silikatmaterialien des Standes der Technik besitzen jedoch den Nachteil, 15 daß sie aufgrund der durch die Silanbeschichtung erhöhten Dispersität eine verstärkte Staubbildung aufweisen. Die Staubanteile sind feinstteilige Silikatteilchen, die im wesentlichen keine nadelförmige Struktur mehr aufweisen und daher im Kunststoff keinerlei Verstärkungseffekte bewirken können. Dies bedeutet, daß ein 20 Teil des eingesetzten Silikatfüllstoffes nicht wirksam ist und lediglich als nicht verstärkender pulverförmiger Füllstoff wirkt.

Man hat versucht, diesen Nachteil zunächst dadurch zu beheben, daß man den Wollastonit verschiedenen Verfahren unterzogen hat, um das Staubverhalten zu 25 mindern. Derartige Verfahren sind jedoch relativ kostenaufwendig und teuer und führen daher zu einer erheblichen Verteuerung dieses Rohstoffes, so daß er aus Kostengründen als verstärkender Füllstoff für Kunststoffe uninteressant wird. Damit ist dieser Rohstoff zu anderen Rohstoffen, wie Glasfasern oder anderen Fasermaterialien, die ebenfalls als verstärkende Füllstoffe eingesetzt werden, nicht mehr konkurrenzfähig.

Die technische Aufgabe der Erfindung war es daher, ein einfaches Verfahren zur Reduzierung des Staubverhaltens von Silikaten, insbesondere von Wollastonit

zur Verfügung zu stellen, das möglichst kostengünstig durchführbar ist und zu einer erheblichen Verringerung des Staubverhaltens des Wollastonites führt.

Dieses technische Aufgabe wird dadurch gelöst, daß man das zerkleinerte Silikat, insbesondere den Wollastonit mit einem Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet.

Es wurde nämlich gefunden, daß im Gegensatz zu bisherigen Oberflächenbeschichtungen aus Silanen die Beschichtung mit Polyorganosiloxanen zu einer erheblichen Verminderung des Staubverhaltens von weit über 50 % gegenüber den Materialien des Standes des Technik führt. Die Oberflächenbeschichtung der Silikate ist ein einfacher kostengünstiger Prozeß. So werden die entsprechenden Oberflächenbeschichtungsmittel üblicherweise durch Mischen des Materials in einem Fluidmischer oberflächlich aufgebracht. Weiterhin ist diese Technik bei der Beschichtung mit entsprechenden Silanverbindungen bereits erprobt. Durch diese einfache Methode, das Staubverhalten der Silikate zu vermindern, sind die bisherigen mehrstufigen physikalischen Verfahren zur Verminderung des Staubverhaltens nicht mehr notwendig und können auf einfache Weise ersetzt werden.

Dabei war es besonders erstaunlich, daß eine Reduzierung des Staubverhaltens bei der Oberflächenbeschichtung mit entsprechenden Silanverbindungen nicht oder nur in geringem Maße eintritt, während die Beschichtung mit Polyorganosiloxanen zu signifikanten Verminderungen des Staubverhaltens führt. Hierzu wurden entsprechende Vergleichsversuche durchgeführt, die im experimentellen Teil der Anmeldung weiter beschrieben werden.

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform wird für die Oberflächenbeschichtung ein Polyorganosiloxan in einer Menge von 0,1 bis 4 Gew.-%, besonders bevorzugt 0,5 bis 1,5 Gew.-% eingesetzt. Als besonders bevorzugtes Polyorganosiloxan wird ein Polysiloxan-Polyether-Copolymer eingesetzt.

Wie bereits weiter oben erwähnt wurde, läßt sich mit diesen Polyorganosiloxanen das Staubverhalten von Silikaten, insbesondere Calciummetasilikaten und ganz besonders bevorzugt Wollastoniten reduzieren.

5 Überraschenderweise stellte sich hierbei heraus, daß durch die staubreduzierende Oberflächenbeschichtung eine gute Einbindung des Füllstoffes in das Kunststoffmaterial erzielt wurde. Durch Verwendung der erfindungsgemäßen Polyorganosiloxanverbindungen wird hier derselbe Effekt erreicht wie mit entsprechenden funktionellen Silanverbindungen, die aus dem Stand der Technik bekannt sind.

10

Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Silikat mit reduziertem Staubverhalten, das mit einem Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet ist, einen Staubanteil nach Heubach von 500 bis 1200 mg/100 g besitzt und wobei das Silikat eine spezifische Oberfläche gemessen nach DIN 66132-BET von 0,5 bis 1,5 m²/g hat.

15

In bevorzugter Weise handelt es sich bei dem Silikat um ein Calciummetasilikat, besonders bevorzugt um einen Wollastonit. Das Silikat ist bevorzugt mit 0,1 bis 4 Gew.-%, besonders bevorzugt 0,5 bis 1,5 Gew.-% Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet. Als Oberflächenbeschichtungsmittel wird bevorzugt ein Polysi-

20 loxan-Polyether-Copolymer eingesetzt. Das Silikat wird als verstärkender Füllstoff in Kunststoffen, insbesondere Polyurethan, Polyamid und Polypropylen, eingesetzt. Die Herstellung des Silikates erfolgt durch Mahlen des Wollastonits auf einer entsprechenden Zerkleinerungsanlage wie beispielsweise einer Gegenstrahlprallmahlanlage. Das zerkleinerte Fertigprodukt wird dann aus der Zerkleinerungsanlage entnommen und in einem Fluidmischer mit dem Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet. Diese Beschichtung erfolgt bei Temperaturen zwischen 25 40 und 100 °C infolge Reibungswärme. Nach dem Beschichten wird das Material auf Raumtemperatur gekühlt. Man erhält als Endprodukt einen staubarmen beschichteten Wollastonit mit den oben angegebenen Eigenschaften.

30

In den nachfolgenden Figuren wird das erfindungsgemäße Produkt näher gekennzeichnet.

Fig 1 zeigt ein FTIR-Spektrum des erhaltenen Produktes als Pressling. Die Figur zeigt die Transmissionen in % in Abhängigkeit von der Wellenzahl in cm^{-1} .

5 Fig. 2 zeigt ein weiteres FTIR-Spektrum des erhaltenen Produktes. Die Auswertung erfolgt als Darstellung der Absorption in Abhängigkeit von der Wellenzahl in cm^{-1} . Der Rohstoff Wollastonit wurde aus dem FTIR-Spektrum mathematisch subtrahiert.

10 Fig. 3 zeigt den Gewichtsanteil des erfindungsgemäßen Produktes in Abhängigkeit von der Nadellänge. Dabei ist die Nadellänge in Nadellängenklassen in μm angegeben.

15 Fig. 4 zeigt den Gewichtsanteil des erfindungsgemäßen Produktes in Abhängigkeit des Nadeldurchmessers. Der Nadeldurchmesser wird in Nadeldurchmesserklassen in μm angegeben.

20 Fig. 5 zeigt schließlich das mittlere Länge-Durchmesser-Verhältnis des erfindungsgemäßen Produktes in Abhängigkeit von der Nadellänge. Die Nadellänge ist in Nadellängenklassen in μm angegeben.

Dieses Material wird bevorzugt als verstärkender Füllstoff in Kunststoffen eingesetzt und führt hier zu einer Verbesserung der mechanischen Eigenschaften, insbesondere der Zugfestigkeit und der Versteifung des Verbundstoffes. Besonders 25 bevorzugt erfolgt der Einsatz als verstärkender Füllstoff in Kunststoffen ausgewählt aus der Gruppe Polyurethan, Polyamid, Polypropylen. Weitere Vorteile liegen in einer hohen Durchsatzleistung am Extruder aufgrund guter Dispergierbarkeit und hoher Wärmeleitfähigkeit des Materials, geringerer Schwindung und höherer Maßhaltigkeit der Wollastonit-haltigen polymeren Vormischung durch Verkleinerung des linearen Ausdehnungsqueffizienten. Die mit dem Material als verstärkendem Füllstoff hergestellten Kunststoffteile besitzen eine exzellente Oberflächenqualität aufgrund der feinteiligen Nadelstruktur des Materials. Weiterhin 30

wird die Wärmeformbeständigkeit verbessert und die Kriechneigung verringert. Durch den Einsatz der verstärkenden Füllstoffe wird auch eine Erhöhung der Oberflächenhärte der Vormischung, bedingt durch die Härte des Füllstoffes erreicht, mit einer optimalen Einbindung des Materials in den Kunststoff.

5

Die nachfolgenden Beispiele sollen die Erfindung näher erläutern, ohne sie zu beschränken.

BEISPIELE

Beispiel 1

5 Herstellung des mit Polyorganosiloxan beschichteten Wollastonits

1000 kg Wollastonit werden auf einer Gegenstrahlprallmahlanlage (Majac) zer-
kleinert. Die Strahlmühle arbeitet mit 2 Borcarbiddüsen und einem Arbeitsdruck
von 7 bar. Der Sichter zum Abscheiden nicht zerkleinerter Grobpartikel wird mit
10 einer Drehzahl in Höhe von 1800 U/min betrieben. Die Abscheidung des Fertig-
produktes erfolgt im Filter.

75 kg des so zerkleinerten Wollastonits werden in einem Thyssen-Henschel-
Fluidmischer FM250D mit 750 g eines Polysiloxan-Polyether-Copolymers
15 (TEGOSTAB B 8427, TH. GOLDSCHMIDT AG, Essen) beschichtet.

Die Drehzahl der Mischwerkzeuge (Bodenräumer, Fluidisierflügel, Hornwerkzeu-
ge) beträgt 1200 U/min. Der Fluidmischer ist doppelwandig und ermöglicht das
Einstellen bestimmter Temperaturprofile unabhängig von der Reibungswärme
20 durch indirekte Beheizung mit heißem Wasser bzw. Wasserdampf. Das im
Wollastonit eingestellte Temperaturprofil erreicht 80 °C.

Anschließend wird der beschichtete Wollastonit mit einer Materialtemperatur von
80 °C in einem doppelwandigem Kühlmischer (Thyssen-Henschel Typ 650) auf
25 Raumtemperatur gekühlt. Die Mischwerkzeuge sind vergleichbar den Mischwerk-
zeugen des Fluidmischers. Die Drehzahl beträgt 140 U/min.

Man erhält als Endprodukt einen staubarmen, beschichteten Wollastonit.

30 Figur 1 zeigt ein FTIR-Spektrum des erhaltenen Produktes als Preßling. Die Figur
zeigt die Transmissionen in % in Abhängigkeit von der Wellenzahl in cm^{-1} . Die

Schwingungsbanden sind charakteristisch für das System Wollastonit beschichtet mit Polyorganosiloxanen.

Die Figur 2 zeigt ein weiteres FTIR-Spektrum des erhaltenen Produktes. Die Auswertung erfolgte als Darstellung der Absorption in Abhängigkeit von der Wellenzahl in cm^{-1} . Es wurde nur die Wellenzahl von 2.400 bis 3.600 erfaßt und im Rahmen der vorliegenden Analyse der Rohstoff Wollastonit aus dem FTIR-Spektrum mathematisch substrahiert. Als Folge davon zeigt Figur 2 lediglich die Schwingungsbanden der Oberflächenbeschichtung, nämlich des Polyorganosiloxanes auf der Oberfläche von Wollastonit insbesondere im Bereich von 2.800 - 3.100 Wellenzahlen. In diesem Wellenzahlbereich sind insbesondere die CH-Schwingungen typisch. Die so erhaltene Abbildung ist daher ein charakteristischer Fingerabdruck für das Oberflächenadditiv und beschreibt die besondere Struktur des verwendeten Polyorganosiloxans.

15

Die Figuren 3, 4 und 5 charakterisieren das erhaltene Produkt. bezüglich der Nadellänge (Figur 3), des Nadeldurchmessers (Figur 4) und des mittleren L/D-Verhältnisses (Länge-Durchmesser), in Abhängigkeit von der Nadellänge (Figur 5).

20

Beispiel 2

Staubmessung

25 In diesem Beispiel wurde das gemäß Beispiel 1 hergestellte erfindungsgemäße Produkt im Vergleich zu Produkten des Standes der Technik auf ihr Staubverhalten untersucht. Im einzelnen wurden folgende Produkte geprüft:

- a) Wollastonit gemäß Beispiel 1
- b) Wollastonit ohne Additiv (Stand der Technik)
- c) Wollastonit mit Aminosilan als Additiv (Stand der Technik)

Die Bestimmung des Staubverhaltens wurde mit folgender Methode vorgenommen :

1. Staubmessung mit dem Dustmeter nach Heubach
2. Bestimmung der spezifische Oberfläche DIN 66132 - BET

1. Staubmessung mit dem Dustmeter nach Heubach

Für die Untersuchung wird ein Heubach-Dustmeter, eine Analysenwaage sowie ein Filter GF 92 (S + S) eingesetzt. Das Meßgerät besteht aus Basisgerät mit Luftpumpe (Volumen, Temperatur, Antriebsmotor, Vakuumdruckpumpe). Es enthält Ausleger mit

- Haltern für Aufbauten
- Staubentwicklungsgefäß
- Grobabschneider
- Luftfiltrationsgefäß

a) Montage

Das Saugrohr mit Schlaucholive wird fest auf den Gewindestutzen geschraubt, das Stabilisator-Rohr auf den Zapfen gesteckt, mit dem Klemmkloben fixiert und der Fuß an den Rohrenden befestigt. Die kurzen Stativstangen können an jeder Stelle des Auslegers fixiert werden. Mit Hilfe der Doppelmuffe und der Stativklemme wird der gewünschte Aufbau erstellt.

b) Funktion und Arbeitsweise

Die zu prüfende Substanz wird im rotierenden Staubentwicklungsgefäß in Bewegung gehalten. Der Staub wird von einem axial eintretenden Luftstrom erfaßt und passiert einen Grobabschneider aus Glas, in dem grobe, nicht flugfähige Partikel sedimentieren. Der im Luftstrom verbleibende Staub wird auf einem Filter abgeschieden. Den zur Prüfung erforderlichen Luftdruck erzeugt eine Vakuum-Druckpumpe; druckseitig erfolgt die Luftpengenmessung.

c) Durchführung der Messung

Einstellung des gewünschten Luftdurchflusses :

Empfohlen wird ein Luftvolumen von 100 l bei einer Meßdauer von 5 min (20 l/min).

Eine Einheit des Zählwerkes entspricht 0,1 l, d. h. für z. B. 100 l Luft sind am 10 Sollwertsteller des vierstelligen Zählwerkes "1000" vorzuwählen. Das mit Filterpapier belegte Lutffiltrationsgefäß wird mit der Pumpe verbunden, das Nadelventil am Flowmeter ganz geöffnet, Netzschalter betätigt, Wahlschalter ausgerastet (Automatikbetrieb), am Sollwertsteller 20 l ("0200") vorgewählt. Nach Drücken der Taste "Start" setzt sich die Pumpe in Betrieb und schaltet nach 20 l selbsttätig 15 ab. Das Nadelventil an der Pumpe wird soweit geschlossen bzw. geöffnet, bis die vorgewählten 20 l in genau 1 min. gefördert werden. Sämtliche weiteren Messungen erfolgen jetzt mit einem Durchfluß von 20 l Luft/min.

d) Staubmessung

Das abgewogene Prüfgut wird in das Staubentwicklungsgefäß eingebracht; je nach Schüttdichte 25 g, 50 g oder 100 g. Bis zu einer Schüttdichte von 0,5 g/ml sollte die Einwaage 25 g bzw. 50 g betragen, darüber 100 g.

25 Vor Beginn der Messung wird das mit Filterpapier belegte Lutffiltrationsgefäß ausgewogen (m_1). Am vierstelligen digitalen Sollwertsteller ist die gewünschte Luftmenge vorgewählt. Wenn alle Verbindungen vom Staubentwicklungsgefäß bis zur Pumpe hergestellt sind, drückt man die Taste "Start" und setzt sowohl den Getriebemotor als auch die Pumpe in Betrieb. Ist die vorgewählte Luftmenge erreicht, 30 wird beides automatisch gestoppt. Erneutes Auswiegen des Filtrationsgefäßes ergibt m_2 . Der am Filter verbleibende Gummistopfen sollte vor der Wägung außen mit Putzpapier gereinigt werden.

e) Standard-Meßbedingungen für QW-Produkte

Die das Meßgerät durchströmende Luft wird immer durch einen vorgeschalteten Trockenturm gefahren, um den Einfluß der Luftfeuchtigkeit auf die Staubentwicklung auszuschalten.

Luftvolumen : 20 l/min.

Meßdauer : 5 min.

10 Einwaage : 50 g

Filter : GF 92, Schleichter & Schüll

f) Auswertung

15 Die Staubungszahl "s" entspricht der von 100 g Prüfgut bei den normierten Bedingungen entwickelten Staubmenge in mg.

Sie wird nach folgender Gleichung berechnet :

$$s = \frac{m_2 - m_1}{m_0} \times 10^5$$

Hierin bedeuten :

25 m_0 Einwaage in g der Probe

m_1 Masse des Filtergehäuses mit eingelegtem Filter vor der Messung

m_2 Masse des Filtergehäuses mit eingelegtem Filter nach der Messung

Die Staubungszahl "s" aller drei Proben wurde ermittelt. Die Tabelle 1 zeigt die 30 Staubungszahl in mg/100 g.

Tabelle 1:

Material	Staubungszahl [mg/100 g]
Wollastonit nach Beispiel 1	700
Wollastonit ohne Additiv	1.200
Wollastonit mit Aminosilan	1.500

Aus Tabelle 1 ist zu ersehen, daß der Wollastonit gemäß Beispiel 1 eine um mehr als 50 % niedrigere Staubzahl aufweist als der Wollastonit gemäß dem Stand der Technik, der mit Aminosilan beschichtet ist.

2. Bestimmung der spezifischen Oberfläche nach DIN 66132 - BET

In dem nachfolgenden Versuch wurde die spezifische Oberfläche des Wollastonit gemäß Beispiel 1 sowie der Vergleichsprodukte aus dem Stand der Technik ermittelt. Die spezifische Oberfläche ist bei Materialien besonders hoch, die einen hohen Staubanteil enthalten, da der Staub eine große spezifische Oberfläche besitzt. Für die drei Produkte konnten folgende Daten ermittelt werden, die in Tabelle 2 dargestellt sind.

Tabelle 2:

Material	spez. Oberfläche [m ² /g]
Wollastonit nach Beispiel 1	0,8
Wollastonit mit Aminosilan	1,2

Aus der Tabelle 2 ist zu ersehen, daß die spezifische Oberfläche des erfindungsgemäßen Produktes geringer ist als die spezifische Oberfläche des Wollastonits mit Aminosilan.

Beispiel 3**Herstellung eines Formteiles aus Kunststoff (Polyurethan) mit verstärkendem Füllstoff Wollastonit**

5

Mit dem Wollastonit-Produkt aus Beispiel 1 sowie mit einem Vergleichsprodukt, nämlich Wollastonit mit Aminosilan beschichtet, wurde ein Kunststoffformteil folgender Zusammensetzung hergestellt :

10 Polyol

Polyether	64,4 Gew.Tl Glycerin / 85 PO / 15 EO, OHZ = 35
Diethytoluylendiamin	35 Gew.Tl
Diazabicyclooctan	0,5 Gew.Tl
Dibutylzimtdilaurat	0,1 Gew.Tl

15

Semiprepolymer

Polyether	Glycerin / 85 PO / 15 EO , OHZ = 35
Diphenylmethan - 4,4'- Diisocyanat	
NCO-Gehalt 18 %	

20

Das Mischungsverhältnis betrug 100 Gew.Tl Polyol und 107 Gew.Tl Semiprepolymer sowie 20 Gew.Tl Wollastonit im Elastomer. Aus dem so hergestellten Kunststoff wurde ein Kunststoffformteil spritzgegossen und auf seine mechanischen Eigenschaften hin untersucht. Es wurden die nachfolgenden in Tabelle 4
25 angegebenen Ergebnisse erzielt :

Tabelle 4:

	Wollastonit mit Aminosilan	Wollastonit nach Beispiel 1
Shore D Härte nach DIN 53505	63	64
Zugfestigkeit nach DIN 53455	25	25
Bruchdehnung in % nach DIN 53455	100	130
Biege-E-Modul (Mpa) nach DIN 53457	1.600	1.800
Schwindung in % nach DIN 53464	0,5	0,4

Aus der Tabelle ist zu ersehen, daß die mechanischen Eigenschaften des Kunststoffes, in dem das Wollastonit gemäß Beispiel 1 eingesetzt wird, gegenüber den mechanischen Eigenschaften herkömmlicher verstärkter Kunststoffe, überlegen ist.

Beispiel 4

10

Herstellung eines Formteils aus Kunststoff (Polypropylen) mit verstärkendem Füllstoff Wollastonit

Es wird ein Polypropylen Copolymer hergestellt mit einem Anteil von 20 Gew.-% Wollastonit gemäß Beispiel 1 sowie mit einem Vergleichsprodukt, nämlich Wollastonit mit Alkylsilan beschichtet. Aus diesem Material wird ein Kunststoffformteil hergestellt und seine mechanischen Eigenschaften ermittelt. Es wurden die nachfolgenden in Tabelle 5 angegebenen Ergebnisse erzielt:

Tabelle 5:

	Wollastonit mit Alkylsilan	Wollastonit nach Beispiel 1
Zugfestigkeit (MPa) DIN 53455	18,4	19,1
Reißdehnung (%) DIN 53455	30,4	17,9
E-Modul (Gpa) DIN 53457	2,266	2,233
Schlagzähigkeit (Izod) (kJ/m ³) ohne Kerbe, Iso 180	50,4	89,0
mit Kerbe, Iso 180	19,0	23,5
Formbeständigkeit in der Wärme HDT-B (°C) DIN 53461	123	115

Aus der Tabelle ist zu ersehen, daß die mechanischen Eigenschaften des Kunststoffes, in dem Wollastonit gemäß Beispiel 1 eingesetzt wird, gegenüber herkömmlich verstärktem Polypropylen verbessert sind.

Patentansprüche

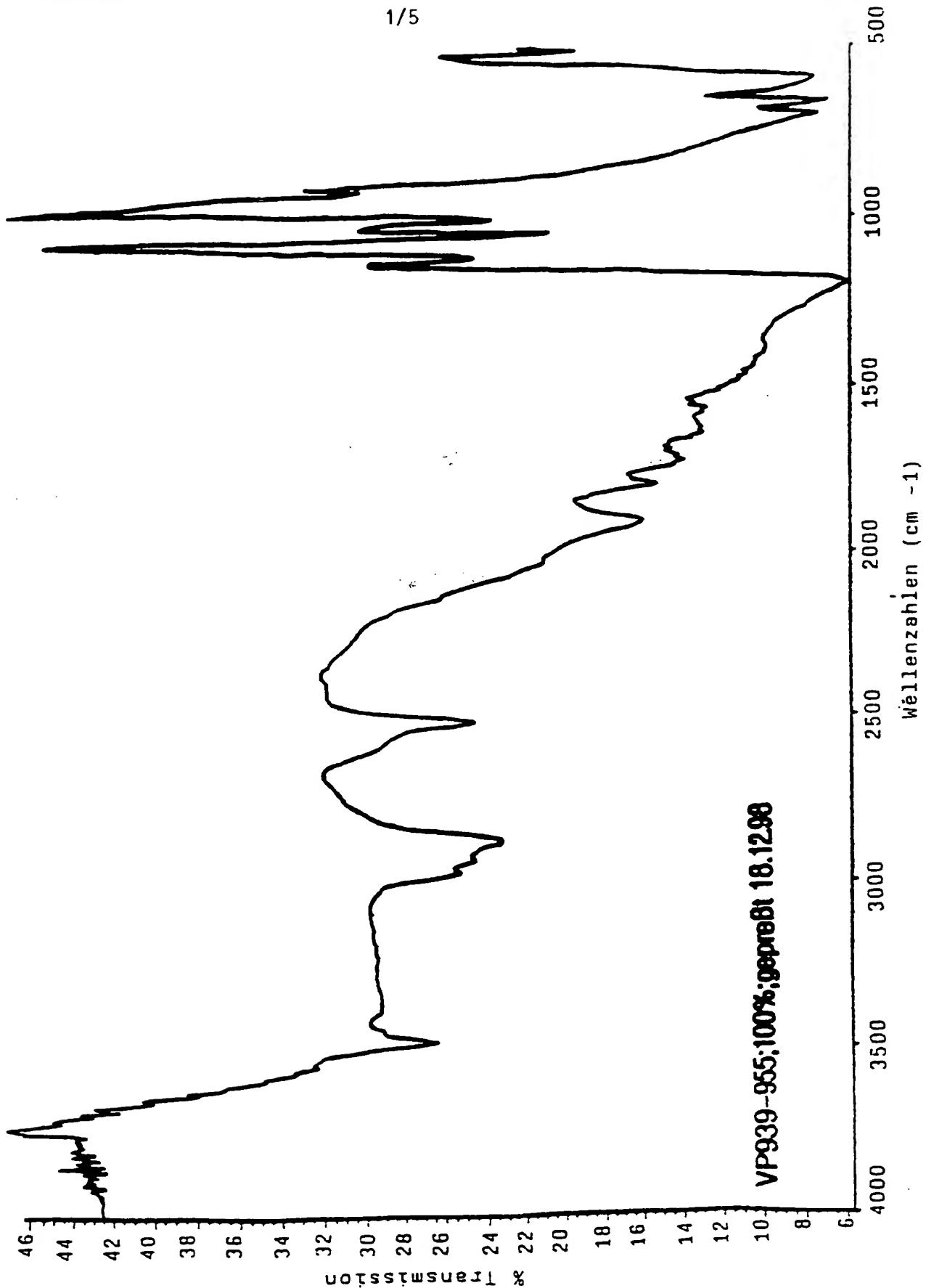
1. Verfahren zur Reduzierung des Staubverhaltens von Silikaten, **dadurch gekennzeichnet**, daß das zerkleinerte Silikat mit einem Polyorganosiloxan 5 oberflächenbeschichtet wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß für die Beschichtung 0,1 bis 4 Gew.-% eines Polyorganosiloxans eingesetzt werden.
- 10 3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet**, daß für die Beschichtung 0,5 bis 1,5 Gew.-% eines Polyorganosiloxans eingesetzt werden.
- 15 4. Verfahren nach den Anprüchen 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet**, daß als Polyorganosiloxan ein Polysiloxan-Polyether-Copolymer eingesetzt wird.
5. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet**, daß als Silikat Calciummetasilikat eingesetzt wird.
- 20 6. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 5, **dadurch gekennzeichnet**, daß als Silikat Wollastonit eingesetzt wird.
7. Silikat mit reduziertem Staubverhalten, **dadurch gekennzeichnet**, daß es 25 mit Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet ist und die folgenden Eigenschaften aufweist:

- spezifische Oberfläche (DIN66132-BET)	0,5 bis 1,5 m ² /g
- Staubanteil (nach Heubach)	500 bis 1200 mg/100g
8. Silikat nach Anspruch 7, **dadurch gekennzeichnet**, daß es ein Calciummetasilikat ist.

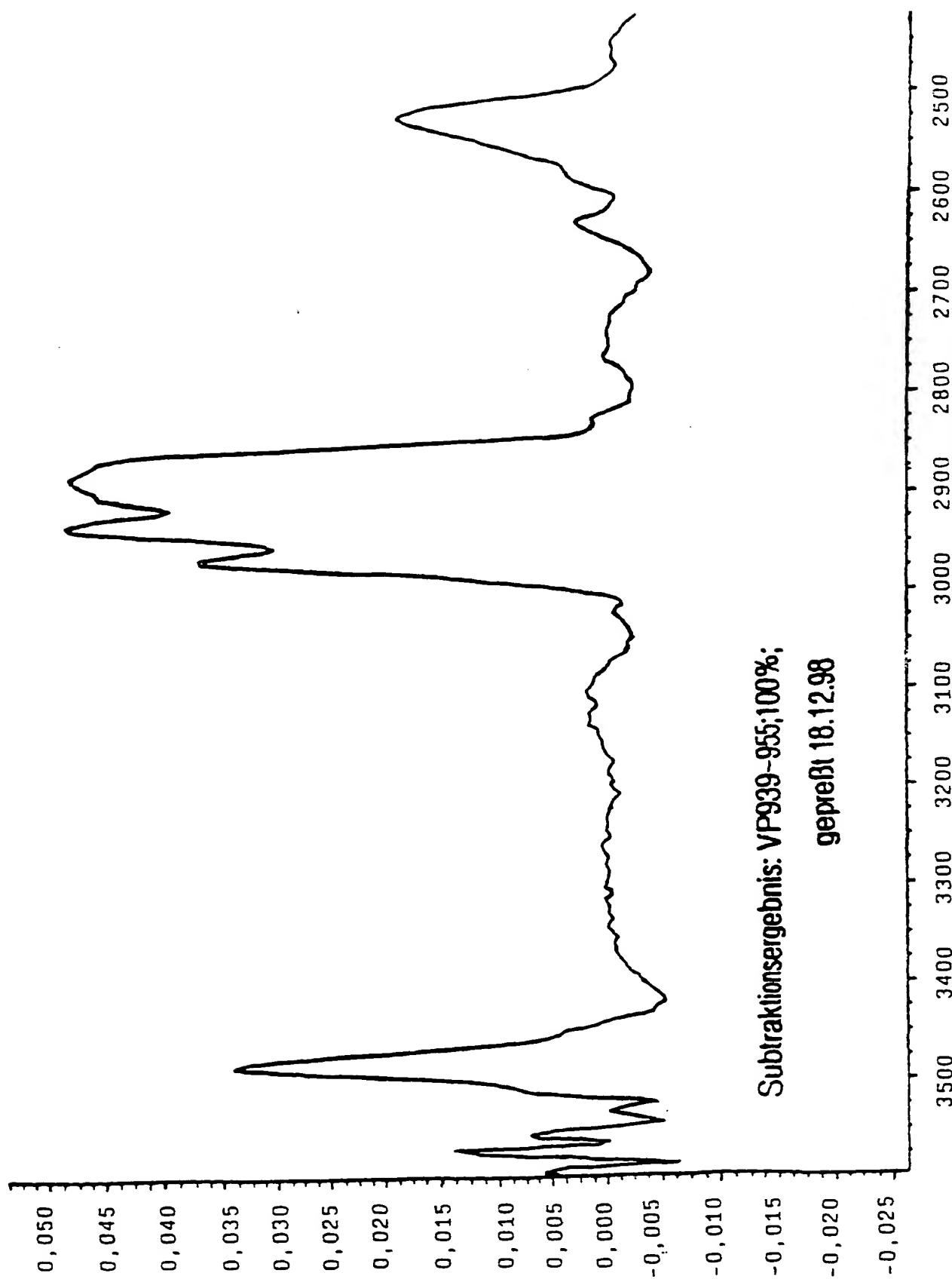
9. Silikat nach Anspruch 7 oder 8, **dadurch gekennzeichnet**, daß es Wollastonit ist.
10. Silikat nach den Ansprüchen 7 bis 9, **dadurch gekennzeichnet**, daß es mit 0,1 bis 4 Gew.-% Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet ist.
11. Silikat nach den Ansprüchen 7 bis 10, **dadurch gekennzeichnet**, daß es mit 0,5 bis 1,5 Gew.-% Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet ist.
- ¹⁰ 12. Silikat nach den Anprüchen 7 bis 11, **dadurch gekennzeichnet**, daß es mit einem Polysiloxan-Polyether-Copolymer oberflächenbeschichtet ist.
13. Verwendung des Silikates nach den Ansprüchen 7 bis 12 als verstärkender Füllstoff in Kunststoffen.
- ¹⁵ 14. Verwendung nach Anspruch 13 als verstärkender Füllstoff in Kunststoffen ausgewählt aus der Gruppe Polyurethan, Polyamid und Polypropylen.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

1/5



THIS PAGE BLANK (USPTO)



THIS PAGE BLANK (USPTO)

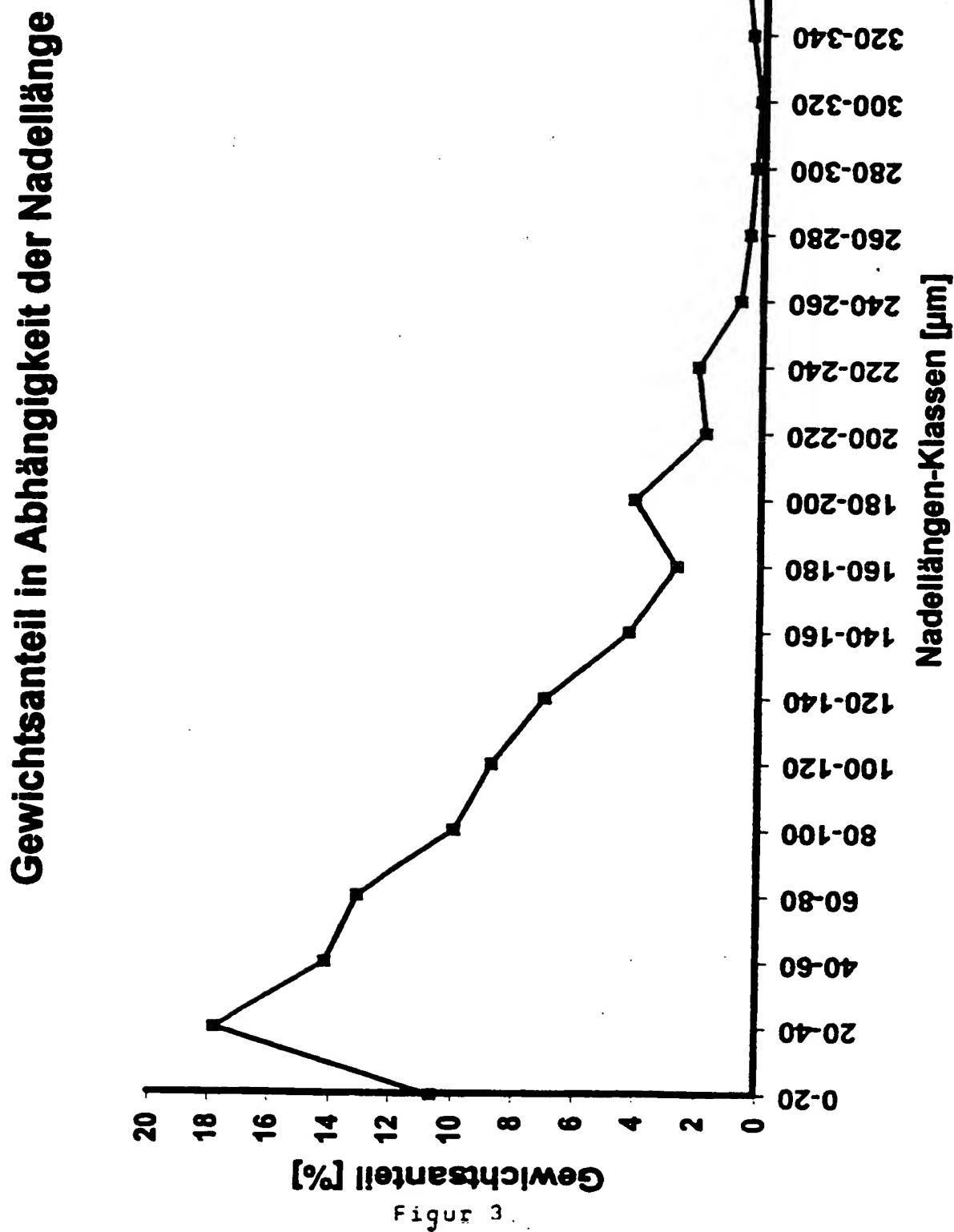
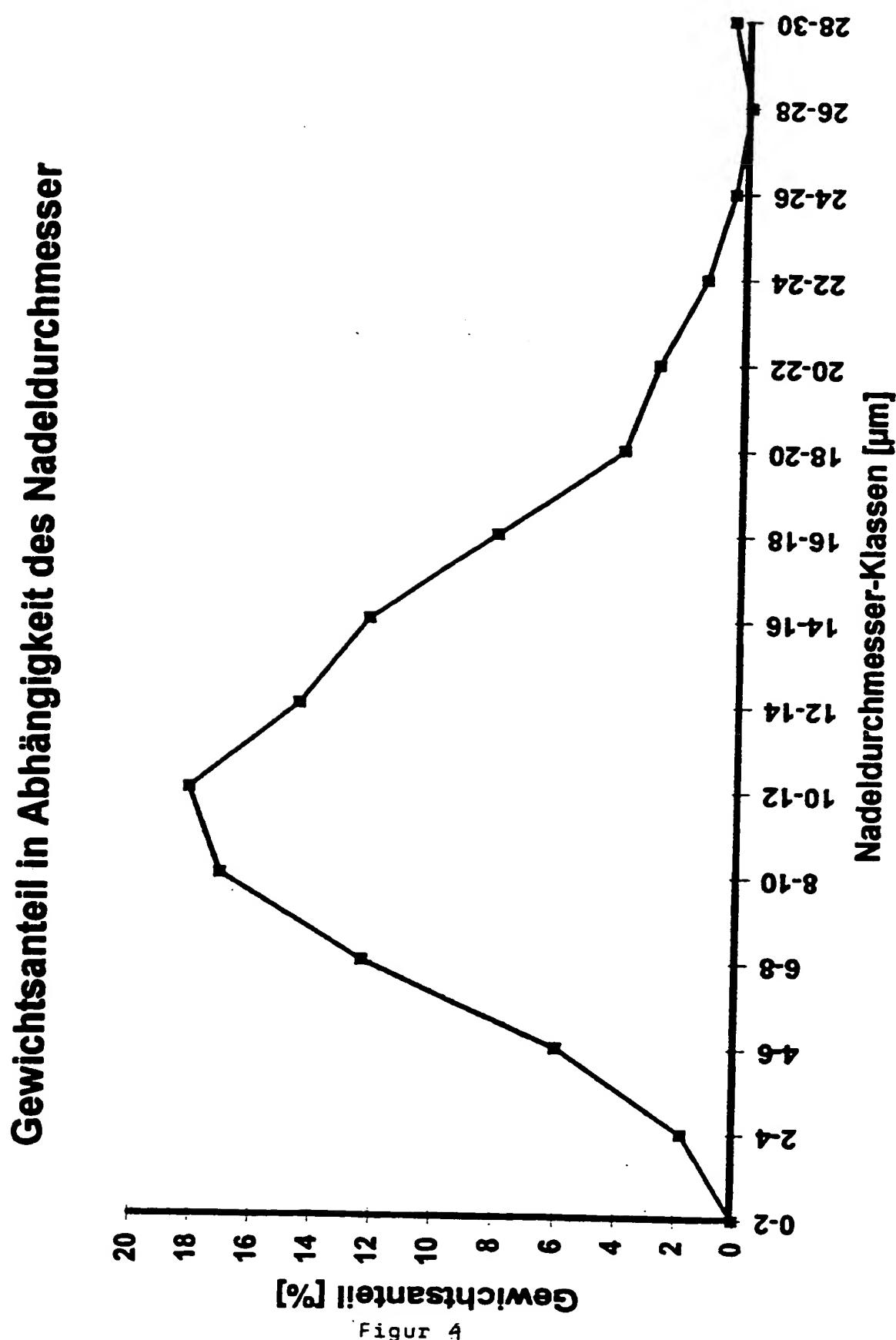


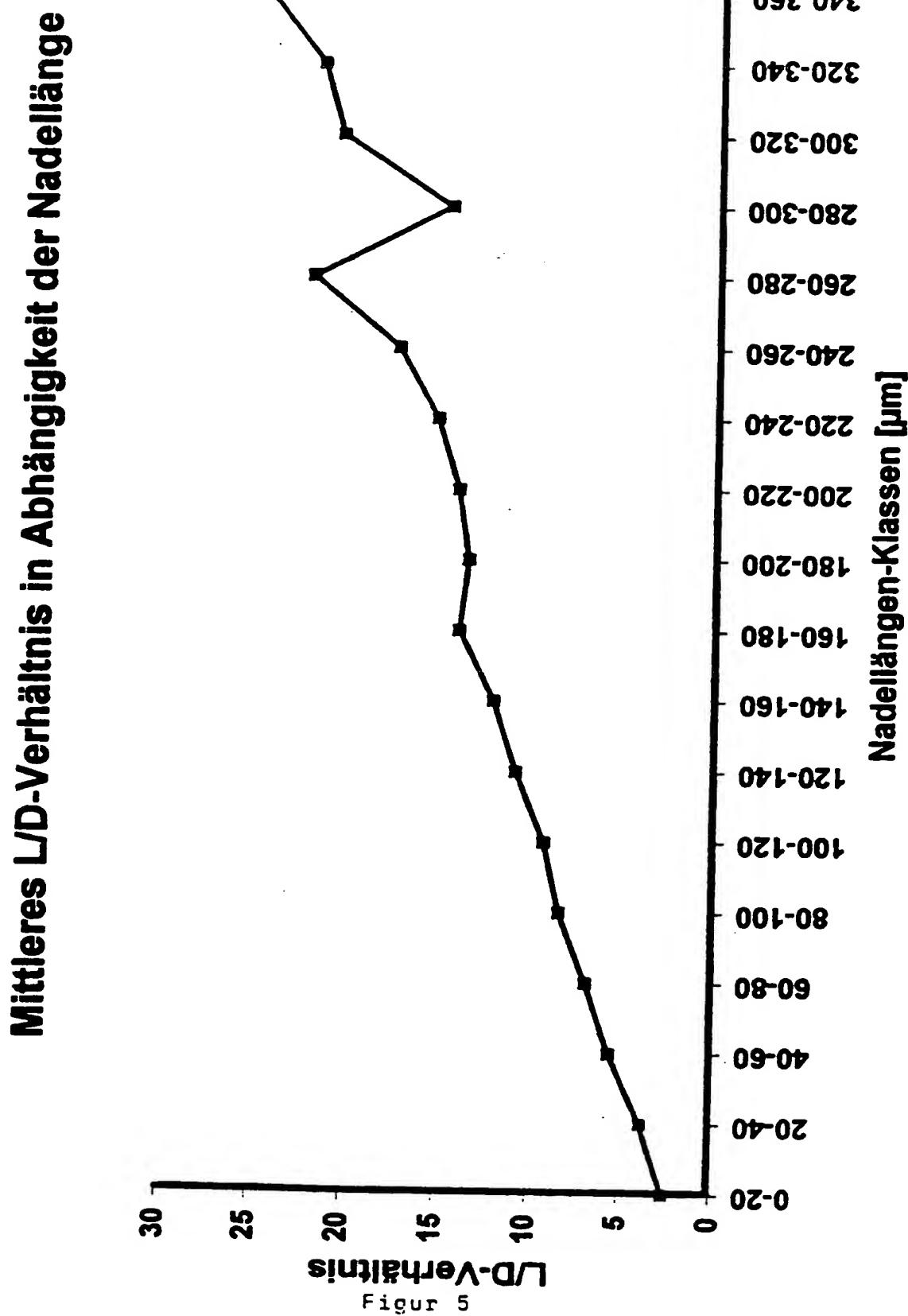
Figure 3

THIS PAGE BLANK (USPTO)



Figur 4

THIS PAGE BLANK (USPTO)



THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 00/01616

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C08K9/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 C08K

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	EP 0 913 431 A (TODA KOGYO CORP) 6 May 1999 (1999-05-06) page 7, line 15 -page 8, line 32 page 11, line 35 - line 54 ---	1-14
X	DE 34 39 745 A (LUGATO CHEMIE DR BUECHTEMANN G) 15 May 1985 (1985-05-15) page 4, paragraph 4 -page 6, paragraph 1 ---	1-3,5-14
X	US 4 184 880 A (HUBER PETER ET AL) 22 January 1980 (1980-01-22) claim 1 ---	1-3,5-14
X	EP 0 843 029 A (BAYER AG) 20 May 1998 (1998-05-20) claims 1,2 ---	1-3,5-12
		-/-

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

Date of mailing of the international search report

7 July 2000

02/08/2000

Name and mailing address of the ISA
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Andriollo, G

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 00/01616

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 129, no. 7, 17 August 1998 (1998-08-17) Columbus, Ohio, US; abstract no. 82241, METCALFE, E.: "Silicon-based flame retardants" XP002142088 abstract & RECENT ADV. FLAME RETARD. POLYM. MATER., vol. 8, 1997, pages 129-135, ---	1-3,5-12
X	GB 2 284 214 A (GEN ELECTRIC) 31 May 1995 (1995-05-31) page 8, line 10 - line 30 ---	1,7,13, 14
A	EP 0 591 676 A (KIMBERLY CLARK CO) 13 April 1994 (1994-04-13) -----	1,4

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Inte. onal Application No

PCT/EP 00/01616

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
EP 0913431	A 06-05-1999	JP	11323174 A	26-11-1999
DE 3439745	A 15-05-1985		NONE	
US 4184880	A 22-01-1980	DE	2641699 A	23-03-1978
		CA	1087336 A	07-10-1980
		FR	2364951 A	14-04-1978
		GB	1564252 A	02-04-1980
		JP	962460 C	20-07-1979
		JP	53042243 A	17-04-1978
		JP	53044504 B	29-11-1978
EP 0843029	A 20-05-1998	DE	19647571 A	20-05-1998
		CN	1184869 A	17-06-1998
		JP	10168657 A	23-06-1998
		US	5969008 A	19-10-1999
GB 2284214	A 31-05-1995	DE	4442158 A	01-06-1995
		FR	2713233 A	09-06-1995
		JP	7216234 A	15-08-1995
EP 0591676	A 13-04-1994	AU	660564 B	29-06-1995
		AU	4893393 A	27-01-1994
		AU	674181 B	12-12-1996
		AU	5357794 A	09-05-1994
		CA	2090793 A	10-04-1994
		CA	2146750 A	28-04-1994
		CN	1089209 A, B	13-07-1994
		CN	1216308 A	12-05-1999
		CN	1225399 A	11-08-1999
		DE	69319607 D	13-08-1998
		DE	69319607 T	05-11-1998
		EP	0663934 A	26-07-1995
		ES	2121098 T	16-11-1998
		JP	6200465 A	19-07-1994
		JP	8502097 T	05-03-1996
		MX	9306259 A	29-04-1994
		WO	9409066 A	28-04-1994
		US	5665803 A	09-09-1997
		ZA	9306315 A	23-03-1994

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/01616

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C08K9/06

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprästoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C08K

Recherchierte aber nicht zum Mindestprästoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
P, X	EP 0 913 431 A (TODA KOGYO CORP) 6. Mai 1999 (1999-05-06) Seite 7, Zeile 15 -Seite 8, Zeile 32 Seite 11, Zeile 35 - Zeile 54 ---	1-14
X	DE 34 39 745 A (LUGATO CHEMIE DR BUECHTEMANN G) 15. Mai 1985 (1985-05-15) Seite 4, Absatz 4 -Seite 6, Absatz 1 ---	1-3,5-14
X	US 4 184 880 A (HUBER PETER ET AL) 22. Januar 1980 (1980-01-22) Anspruch 1 ---	1-3,5-14
X	EP 0 843 029 A (BAYER AG) 20. Mai 1998 (1998-05-20) Ansprüche 1,2 ---	1-3,5-12
		-/-

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldeatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldeatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldeatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahelegend ist

& Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

7. Juli 2000

02/08/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Andriollo, G

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 00/01616

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 129, no. 7, 17. August 1998 (1998-08-17) Columbus, Ohio, US; abstract no. 82241, METCALFE, E.: "Silicon-based flame retardants" XP002142088 Zusammenfassung & RECENT ADV. FLAME RETARD. POLYM. MATER., Bd. 8, 1997, Seiten 129-135, ----	1-3,5-12
X	GB 2 284 214 A (GEN ELECTRIC) 31. Mai 1995 (1995-05-31) Seite 8, Zeile 10 - Zeile 30 ----	1,7,13, 14
A	EP 0 591 676 A (KIMBERLY CLARK CO) 13. April 1994 (1994-04-13) -----	1,4

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Inter. nationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/01616

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
EP 0913431 A	06-05-1999	JP	11323174 A	26-11-1999
DE 3439745 A	15-05-1985	KEINE		
US 4184880 A	22-01-1980	DE	2641699 A	23-03-1978
		CA	1087336 A	07-10-1980
		FR	2364951 A	14-04-1978
		GB	1564252 A	02-04-1980
		JP	962460 C	20-07-1979
		JP	53042243 A	17-04-1978
		JP	53044504 B	29-11-1978
EP 0843029 A	20-05-1998	DE	19647571 A	20-05-1998
		CN	1184869 A	17-06-1998
		JP	10168657 A	23-06-1998
		US	5969008 A	19-10-1999
GB 2284214 A	31-05-1995	DE	4442158 A	01-06-1995
		FR	2713233 A	09-06-1995
		JP	7216234 A	15-08-1995
EP 0591676 A	13-04-1994	AU	660564 B	29-06-1995
		AU	4893393 A	27-01-1994
		AU	674181 B	12-12-1996
		AU	5357794 A	09-05-1994
		CA	2090793 A	10-04-1994
		CA	2146750 A	28-04-1994
		CN	1089209 A, B	13-07-1994
		CN	1216308 A	12-05-1999
		CN	1225399 A	11-08-1999
		DE	69319607 D	13-08-1998
		DE	69319607 T	05-11-1998
		EP	0663934 A	26-07-1995
		ES	2121098 T	16-11-1998
		JP	6200465 A	19-07-1994
		JP	8502097 T	05-03-1996
		MX	9306259 A	29-04-1994
		WO	9409066 A	28-04-1994
		US	5665803 A	09-09-1997
		ZA	9306315 A	23-03-1994

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro



INTERNATIONALE MELDUNG VERÖFFENTLICH NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 7 : C08K 9/06		A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/58396 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 5. Oktober 2000 (05.10.00)
(21) Internationales Aktenzeichen:	PCT/EP00/01616		(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AU, BA, BB, BG, BR, CA, CN, CR, CU, CZ, DM, EE, GD, GE, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KP, KR, LC, LK, LR, LT, LV, MA, MG, MK, MN, MX, NO, NZ, PL, RO, RU, SG, SI, SK, SL, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
(22) Internationales Anmeldedatum:	26. Februar 2000 (26.02.00)		
(30) Prioritätsdaten:	199 13 810.9	26. März 1999 (26.03.99)	DE
(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):	QUARZWERKE GMBH [DE/DE]; Kaskadenweg 40, D-50226 Frechen (DE).		
(72) Erfinder; und			Veröffentlicht
(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):	FENTEN, Norbert [DE/DE]; Widdendorfer Strasse 21, D-50189 Elsdorf (DE). WOLF, Wilfried [DE/DE]; Am Maria Born 28a, D-50354 Hürth (DE).		<i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>
(74) Anwalt:	GODEMEYER, Thomas; An den Gärten 7, D-51491 Overath (DE).		

(54) Title: METHOD OF REDUCING THE DUST GENERATION OF SILICATES

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR REDUZIERUNG DES STAUBVERHALTENS VON SILIKATEN

(57) Abstract

The invention relates to a method for reducing the dust generation of silicates, according to which the crushed silicate is surface-coated with a polyorganosiloxane. The invention also relates to a silicate with reduced dust generation and to the use of said silicate as reinforcing filler in plastic materials.

(57) Zusammenfassung

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Reduzierung des Staubverhaltens von Silikaten, wobei das zerkleinerte Silikat mit einem Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet wird. Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Silikat mit reduziertem Staubverhalten sowie die Verwendung des Silikates als verstärkender Füllstoff in Kunststoffen.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereiniges Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

Verfahren zur Reduzierung des Staubverhaltens von Silikaten

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Reduzierung des Staubverhaltens von Silikaten. Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Silikat mit reduziertem Staubverhalten.

Silikate, insbesondere nadelförmige Silikate wie beispielsweise Wollastonit, ein Ketten Silikat, werden als verstärkende Füllstoffe für Kunststoffanwendungen eingesetzt.

10

Bei Wollastonit handelt es sich um ein natürliches Calciumsilikat der Formel $\text{Ca}_3[\text{Si}_3\text{O}_9]$. Monokliner Wollastonit besteht aus SiO_4 -Tetraedern, die in Anordnung von Dreierketten der Formel $[\text{Si}_3\text{O}_9]^{6-}$ verbunden sind: Dabei sind die einzelnen Ketten durch Ca^{2+} -Ionen miteinander verbunden. Dies erklärt, weshalb die Partikel 15 des Wollastonits eine nadelförmige Struktur aufweisen können.

Wollastonit besitzt weiterhin vorteilhafte Stoffeigenschaften. Hierzu gehört beispielweise das Fehlen von chemisch gebundenem Wasser, welches in anderen wasserenthaltenen Silikaten dazu führt, daß sich die Struktur beim Erhitzen durch 20 Wasserverlust verändert. Dies würde im Falle der Einarbeitung in Kunststoffe dazu führen, daß ein verstärkender Effekt nicht mehr erzielt würde. Weitere Vorteile sind der geringe Schrumpfungsgrad beim Trocknen und beim Erhitzen, ein sehr geringer Expansionskoeffizient und gute mechanische Eigenschaften der hergestellten Kunststoffprodukte, die Wollastonit enthalten. Neben der Anwendung als 25 Additiv für Kunststoffe wird Wollastonit auch verwendet zur Herstellung von keramischen Produkten, Sanitärtartikeln und Porzellan.

Die vorliegende Erfindung betrifft vorwiegend den Einsatz des Wollastonites in Kunststoffen.

Dabei wird der Wollastonit als Füllstoff hergestellt durch Mahlung des gewonnenen Wollastonites mit nachfolgender Windsichtung. Man erhält dann nadelförmige

ge Wollastonitteilchen, die entweder direkt in die Kunststoffmischung eingearbeitet werden oder in Form von polymeren Vormischungen mit Anteilen von 10 bis 40 Gew. % Wollastonit in die Kunststoffe eingearbeitet werden. Aufgrund der nadelförmigen Struktur des Wollastonites erzielt man eine erhebliche Verbesserung der 5 mechanischen Eigenschaften im Kunststoff und bei den daraus hergestellten Kunststoffformteilen.

Zusätzlich wird gemäß dem Stand der Technik der Wollastonit häufig mit Silanverbindungen beschichtet, um eine bessere Einbindung in das Kunststoffmaterial 10 zu erzielen. Dabei werden beispielsweise Oberflächenbeschichtungen mit Aminosilan, Epoxysilan, Methacrylsilan, Trimethylsilan, Vinylsilan oder Alkylsilan vorgenommen.

Diese Silikatmaterialien des Standes der Technik besitzen jedoch den Nachteil, 15 daß sie aufgrund der durch die Silanbeschichtung erhöhten Dispersität eine verstärkte Staubbildung aufweisen. Die Staubanteile sind feinstteilige Silikatteilchen, die im wesentlichen keine nadelförmige Struktur mehr aufweisen und daher im Kunststoff keinerlei Verstärkungseffekte bewirken können. Dies bedeutet, daß ein 20 Teil des eingesetzten Silikatfüllstoffes nicht wirksam ist und lediglich als nicht verstärkender pulverförmiger Füllstoff wirkt.

Man hat versucht, diesen Nachteil zunächst dadurch zu beheben, daß man den Wollastonit verschiedenen Verfahren unterzogen hat, um das Staubverhalten zu mindern. Derartige Verfahren sind jedoch relativ kostenaufwendig und teuer und 25 führen daher zu einer erheblichen Verteuerung dieses Rohstoffes, so daß er aus Kostengründen als verstärkender Füllstoff für Kunststoffe uninteressant wird. Damit ist dieser Rohstoff zu anderen Rohstoffen, wie Glasfasern oder anderen Fasermaterialien, die ebenfalls als verstärkende Füllstoffe eingesetzt werden, nicht mehr konkurrenzfähig.

Die technische Aufgabe der Erfindung war es daher, ein einfaches Verfahren zur Reduzierung des Staubverhaltens von Silikaten, insbesondere von Wollastonit

zur Verfügung zu stellen, das möglichst kostengünstig durchführbar ist und zu einer erheblichen Verringerung des Staubverhaltens des Wollastonites führt.

Dieses technische Aufgabe wird dadurch gelöst, daß man das zerkleinerte Silikat, insbesondere den Wollastonit mit einem Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet.

Es wurde nämlich gefunden, daß im Gegensatz zu bisherigen Oberflächenbeschichtungen aus Silanen die Beschichtung mit Polyorganosiloxanen zu einer erheblichen Verminderung des Staubverhaltens von weit über 50 % gegenüber den Materialien des Standes der Technik führt. Die Oberflächenbeschichtung der Silikate ist ein einfacher kostengünstiger Prozeß. So werden die entsprechenden Oberflächenbeschichtungsmittel üblicherweise durch Mischen des Materials in einem Fluidmischer oberflächlich aufgebracht. Weiterhin ist diese Technik bei der Beschichtung mit entsprechenden Silanverbindungen bereits erprobt. Durch diese einfache Methode, das Staubverhalten der Silikate zu vermindern, sind die bisherigen mehrstufigen physikalischen Verfahren zur Verminderung des Staubverhaltens nicht mehr notwendig und können auf einfache Weise ersetzt werden.

Dabei war es besonders erstaunlich, daß eine Reduzierung des Staubverhaltens bei der Oberflächenbeschichtung mit entsprechenden Silanverbindungen nicht oder nur in geringem Maße eintritt, während die Beschichtung mit Polyorganosiloxanen zu signifikanten Verminderungen des Staubverhaltens führt. Hierzu wurden entsprechende Vergleichsversuche durchgeführt, die im experimentellen Teil der Anmeldung weiter beschrieben werden.

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform wird für die Oberflächenbeschichtung ein Polyorganosiloxan in einer Menge von 0,1 bis 4 Gew.-%, besonders bevorzugt 0,5 bis 1,5 Gew.-% eingesetzt. Als besonders bevorzugtes Polyorganosiloxan wird ein Polysiloxan-Polyether-Copolymer eingesetzt.

Wie bereits weiter oben erwähnt wurde, läßt sich mit diesen Polyorganosiloxanen das Staubverhalten von Silikaten, insbesondere Calciummetasilikaten und ganz besonders bevorzugt Wollastoniten reduzieren.

- 5 Überraschenderweise stellte sich hierbei heraus, daß durch die staubreduzierende Oberflächenbeschichtung eine gute Einbindung des Füllstoffes in das Kunststoffmaterial erzielt wurde. Durch Verwendung der erfindungsgemäßen Polyorganosiloxanverbindungen wird hier derselbe Effekt erreicht wie mit entsprechenden funktionellen Silanverbindungen, die aus dem Stand der Technik bekannt sind.

10

Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Silikat mit reduziertem Staubverhalten, das mit einem Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet ist, einen Staubanteil nach Heubach von 500 bis 1200 mg/100 g besitzt und wobei das Silikat eine spezifische Oberfläche gemessen nach DIN 66132-BET von 0,5 bis 1,5 m²/g hat.

15

In bevorzugter Weise handelt es sich bei dem Silikat um ein Calciummetasilikat, besonders bevorzugt um einen Wollastonit. Das Silikat ist bevorzugt mit 0,1 bis 4 Gew.-%, besonders bevorzugt 0,5 bis 1,5 Gew.-% Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet. Als Oberflächenbeschichtungsmittel wird bevorzugt ein Polysiloxan-Polyether-Copolymer eingesetzt. Das Silikat wird als verstärkender Füllstoff in Kunststoffen, insbesondere Polyurethan, Polyamid und Polypropylen, eingesetzt. Die Herstellung des Silikates erfolgt durch Mahlen des Wollastonits auf einer entsprechenden Zerkleinerungsanlage wie beispielsweise einer Gegenstrahlprallmahlranlage. Das zerkleinerte Fertigprodukt wird dann aus der Zerkleinerungsanlage entnommen und in einem Fluidmischer mit dem Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet. Diese Beschichtung erfolgt bei Temperaturen zwischen 40 und 100 °C infolge Reibungswärme. Nach dem Beschichten wird das Material auf Raumtemperatur gekühlt. Man erhält als Endprodukt einen staubarmen beschichteten Wollastonit mit den oben angegebenen Eigenschaften.

20

In den nachfolgenden Figuren wird das erfindungsgemäße Produkt näher gekennzeichnet.

Fig 1 zeigt ein FTIR-Spektrum des erhaltenen Produktes als Pressling. Die Figur zeigt die Transmissionen in % in Abhängigkeit von der Wellenzahl in cm^{-1} .

5 Fig. 2 zeigt ein weiteres FTIR-Spektrum des erhaltenen Produktes. Die Auswertung erfolgt als Darstellung der Absorption in Abhängigkeit von der Wellenzahl in cm^{-1} . Der Rohstoff Wollastonit wurde aus dem FTIR-Spektrum mathematisch subtrahiert.

10 Fig. 3 zeigt den Gewichtsanteil des erfindungsgemäßen Produktes in Abhängigkeit von der Nadellänge. Dabei ist die Nadellänge in Nadellängenklassen in μm angegeben.

15 Fig. 4 zeigt den Gewichtsanteil des erfindungsgemäßen Produktes in Abhängigkeit des Nadeldurchmessers. Der Nadeldurchmesser wird in Nadeldurchmesserklassen in μm angegeben.

20 Fig. 5 zeigt schließlich das mittlere Länge-Durchmesser-Verhältnis des erfindungsgemäßen Produktes in Abhängigkeit von der Nadellänge. Die Nadellänge ist in Nadellängenklassen in μm angegeben.

Dieses Material wird bevorzugt als verstärkender Füllstoff in Kunststoffen eingesetzt und führt hier zu einer Verbesserung der mechanischen Eigenschaften, insbesondere der Zugfestigkeit und der Versteifung des Verbundstoffes. Besonders 25 bevorzugt erfolgt der Einsatz als verstärkender Füllstoff in Kunststoffen ausgewählt aus der Gruppe Polyurethan, Polyamid, Polypropylen. Weitere Vorteile liegen in einer hohen Durchsatzleistung am Extruder aufgrund guter Dispergierbarkeit und hoher Wärmeleitfähigkeit des Materials, geringerer Schwindung und höherer Maßhaltigkeit der Wollastonit-haltigen polymeren Vormischung durch Ver- 30 kleinerung des linearen Ausdehnungsqueffizienten. Die mit dem Material als verstärkendem Füllstoff hergestellten Kunststoffteile besitzen eine exzellente Oberflächenqualität aufgrund der feinteiligen Nadelstruktur des Materials. Weiterhin

wird die Wärmeformbeständigkeit verbessert und die Kriechneigung verringert. Durch den Einsatz der verstärkenden Füllstoffe wird auch eine Erhöhung der Oberflächenhärte der Vormischung, bedingt durch die Härte des Füllstoffes erreicht, mit einer optimalen Einbindung des Materials in den Kunststoff.

5

Die nachfolgenden Beispiele sollen die Erfindung näher erläutern, ohne sie zu beschränken.

BEISPIELE

Beispiel 1

1. Herstellung des mit Polyorganosiloxan beschichteten Wollastonits

1000 kg Wollastonit werden auf einer Gegenstrahlprallmahlalange (Majac) zerkleinert. Die Strahlmühle arbeitet mit 2 Borcarbiddüsen und einem Arbeitsdruck von 7 bar. Der Sichter zum Abscheiden nicht zerkleinerter Grobpartikel wird mit einer Drehzahl in Höhe von 1800 U/min betrieben. Die Abscheidung des Fertigproduktes erfolgt im Filter.

75 kg des so zerkleinerten Wollastonits werden in einem Thyssen-Henschel-Fluidmischer FM250D mit 750 g eines Polysiloxan-Polyether-Copolymers (TEGOSTAB B 8427, TH. GOLDSCHMIDT AG, Essen) beschichtet.

Die Drehzahl der Mischwerkzeuge (Bodenräumer, Fluidisierflügel, Hornwerkzeuge) beträgt 1200 U/min. Der Fluidmischer ist doppelwandig und ermöglicht das Einstellen bestimmter Temperaturprofile unabhängig von der Reibungswärme durch indirekte Beheizung mit heißem Wasser bzw. Wasserdampf. Das im Wollastonit eingestellte Temperaturprofil erreicht 80 °C.

Anschließend wird der beschichtete Wollastonit mit einer Materialtemperatur von 80 °C in einem doppelwandigem Kühlmischer (Thyssen-Henschel Typ 650) auf Raumtemperatur gekühlt. Die Mischwerkzeuge sind vergleichbar den Mischwerkzeugen des Fluidmischers. Die Drehzahl beträgt 140 U/min.

Man erhält als Endprodukt einen staubarmen, beschichteten Wollastonit.

Figur 1 zeigt ein FTIR-Spektrum des erhaltenen Produktes als Preßling. Die Figur zeigt die Transmissionen in % in Abhängigkeit von der Wellenzahl in cm^{-1} . Die

Schwingungsbanden sind charakteristisch für das System Wollastonit beschichtet mit Polyorganosiloxanen.

Die Figur 2 zeigt ein weiteres FTIR-Spektrum des erhaltenen Produktes. Die 5 Auswertung erfolgte als Darstellung der Absorbtion in Abhängigkeit von der Wellenzahl in cm^{-1} . Es wurde nur die Wellenzahl von 2.400 bis 3.600 erfaßt und im Rahmen der vorliegenden Analyse der Rohstoff Wollastonit aus dem FTIR-Spektrum mathematisch substrahiert. Als Folge davon zeigt Figur 2 lediglich die Schwingungsbanden der Oberflächenbeschichtung, nämlich des Polyorganosiloxanes auf der Oberfläche von Wollastonit insbesondere im Bereich von 2.800 - 10 3.100 Wellenzahlen. In diesem Wellenzahlbereich sind insbesondere die CH-Schwingungen typisch. Die so erhaltene Abbildung ist daher ein charakteristischer Fingerabdruck für das Oberflächenadditiv und beschreibt die besondere Struktur des verwendeten Polyorganosiloxans.

15

Die Figuren 3, 4 und 5 charakterisieren das erhaltene Produkt, bezüglich der Nadellänge (Figur 3), des Nadeldurchmessers (Figur 4) und des mittleren L/D-Verhältnisses (Länge-Durchmesser), in Abhängigkeit von der Nadellänge (Figur 5).

20

Beispiel 2

Staubmessung

25 In diesem Beispiel wurde das gemäß Beispiel 1 hergestellte erfindungsgemäße Produkt im Vergleich zu Produkten des Standes der Technik auf ihr Staubverhalten untersucht. Im einzelnen wurden folgende Produkte geprüft:

- a) Wollastonit gemäß Beispiel 1
- b) Wollastonit ohne Additiv (Stand der Technik)
- c) Wollastonit mit Aminosilan als Additiv (Stand der Technik)

Die Bestimmung des Staubverhaltens wurde mit folgender Methode vorgenommen :

1. Staubmessung mit dem Dustmeter nach Heubach
2. Bestimmung der spezifische Oberfläche DIN 66132 - BET

1. Staubmessung mit dem Dustmeter nach Heubach

Für die Untersuchung wird ein Heubach-Dustmeter, eine Analysenwaage sowie ein Filter GF 92 (S + S) eingesetzt. Das Meßgerät besteht aus Basisgerät mit Luftmessung (Volumen, Temperatur, Antriebsmotor, Vakuumdruckpumpe). Es enthält Ausleger mit

- Haltern für Aufbauten
- Staubentwicklungsgefäß
- Grobabschneider
- Luftfiltrationsgefäß

15

a) Montage

Das Saugrohr mit Schlaucholive wird fest auf den Gewindestutzen geschraubt, das Stabilisator-Rohr auf den Zapfen gesteckt, mit dem Klemmkloben fixiert und der Fuß an den Rohrenden befestigt. Die kurzen Stativstangen können an jeder Stelle des Auslegers fixiert werden. Mit Hilfe der Doppelmuffe und der Stativklemme wird der gewünschte Aufbau erstellt.

25 b) Funktion und Arbeitsweise

Die zu prüfende Substanz wird im rotierenden Staubentwicklungsgefäß in Bewegung gehalten. Der Staub wird von einem axial eintretenden Luftstrom erfaßt und passiert einen Grobabschneider aus Glas, in dem grobe, nicht flugfähige Partikel sedimentieren. Der im Luftstrom verbleibende Staub wird auf einem Filter abgeschieden. Den zur Prüfung erforderlichen Luftdruck erzeugt eine Vakuum-Druck-Pumpe; druckseitig erfolgt die Luftpengenmessung.

c) Durchführung der Messung

Einstellung des gewünschten Luftdurchflusses :

5

Empfohlen wird ein Luftvolumen von 100 l bei einer Meßdauer von 5 min (20 l/min).

Eine Einheit des Zählwerkes entspricht 0,1 l, d. h. für z. B. 100 l Luft sind am 10 Sollwertsteller des vierstelligen Zählwerkes "1000" vorzuwählen. Das mit Filterpapier belegte Luffiltrationsgefäß wird mit der Pumpe verbunden, das Nadelventil am Flowmeter ganz geöffnet, Netzschalter betätigt, Wahlschalter ausgerastet (Automatikbetrieb), am Sollwertsteller 20 l ("0200") vgewählt. Nach Drücken der Taste "Start" setzt sich die Pumpe in Betrieb und schaltet nach 20 l selbsttätig 15 ab. Das Nadelventil an der Pumpe wird soweit geschlossen bzw. geöffnet, bis die vgewählten 20 l in genau 1 min. gefördert werden. Sämtliche weiteren Messungen erfolgen jetzt mit einem Durchfluß von 20 l Luft/min.

d) Staubmessung

20

Das abgewogene Prüfgut wird in das Staubentwicklungsgefäß eingebracht; je nach Schüttdichte 25 g, 50 g oder 100 g. Bis zu einer Schüttdichte von 0,5 g/ml sollte die Einwaage 25 g bzw. 50 g betragen, darüber 100 g.

25 Vor Beginn der Messung wird das mit Filterpapier belegte Luffiltrationsgefäß ausgewogen (m_1). Am vierstelligen digitalen Sollwertsteller ist die gewünschte Luftmenge vgewählt. Wenn alle Verbindungen vom Staubentwicklungsgefäß bis zur Pumpe hergestellt sind, drückt man die Taste "Start" und setzt sowohl den Getriebemotor als auch die Pumpe in Betrieb. Ist die vgewählte Luftmenge erreicht, 30 wird beides automatisch gestoppt. Erneutes Auswiegen des Filtrationsgefäßes ergibt m_2 . Der am Filter verbleibende Gummistopfen sollte vor der Wägung außen mit Putzpapier gereinigt werden.

e) Standard-Meßbedingungen für QW-Produkte

- Die das Meßgerät durchströmende Luft wird immer durch einen vorgeschalteten Trockenturm gefahren, um den Einfluß der Luftfeuchtigkeit auf die Staubentwicklung auszuschalten.

Luftvolumen : 20 l/min.

Meßdauer : 5 min.

10 Einwaage : 50 g

Filter : GF 92, Schleichter & Schüll

f) Auswertung

- 15 Die Staubungszahl "s" entspricht der von 100 g Prüfgut bei den normierten Bedingungen entwickelten Staubmenge in mg.

Sie wird nach folgender Gleichung berechnet :

$$s = \frac{m_2 - m_1}{m_0} \times 10^5$$

Hierin bedeuten :

25 m_0 Einwaage in g der Probe

m_1 Masse des Filtergehäuses mit eingelegtem Filter vor der Messung

29 m_2 Masse des Filtergehäuses mit eingelegtem Filter nach der Messung

- Die Staubungszahl "s" aller drei Proben wurde ermittelt. Die Tabelle 1 zeigt die Staubungszahl in mg/100 g.

Tabelle 1:

Material	Staubungszahl [mg/100 g]
Wollastonit nach Beispiel 1	700
Wollastonit ohne Additiv	1.200
Wollastonit mit Aminosilan	1.500

Aus Tabelle 1 ist zu ersehen, daß der Wollastonit gemäß Beispiel 1 eine um mehr
5 als 50 % niedrigere Staubzahl aufweist als der Wollastonit gemäß dem Stand der
Technik, der mit Aminosilan beschichtet ist.

2. Bestimmung der spezifischen Oberfläche nach DIN 66132 - BET

10 In dem nachfolgenden Versuch wurde die spezifische Oberfläche des Wollastonit
gemäß Beispiel 1 sowie der Vergleichsprodukte aus dem Stand der Technik ermit-
telt. Die spezifische Oberfläche ist bei Materialien besonders hoch, die einen ho-
hen Staubanteil enthalten, da der Staub eine große spezifische Oberfläche be-
sitzt. Für die drei Produkte konnten folgende Daten ermittelt werden, die in Tabel-
15 le 2 dargestellt sind.

Tabelle 2:

Material	spez. Oberfläche [m ² /g]
Wollastonit nach Beispiel 1	0,8
Wollastonit mit Aminosilan	1,2

20 Aus der Tabelle 2 ist zu ersehen, daß die spezifische Oberfläche des erfindungs-
gemäßen Produktes geringer ist als die spezifische Oberfläche des Wollastonits
mit Aminosilan.

Beispiel 3**Herstellung eines Formteiles aus Kunststoff (Polyurethan) mit verstärkendem Füllstoff Wollastonit**

5

Mit dem Wollastonit-Produkt aus Beispiel 1 sowie mit einem Vergleichsprodukt, nämlich Wollastonit mit Aminosilan beschichtet, wurde ein Kunststoffformteil folgender Zusammensetzung hergestellt :

10 Polyol

Polyether	64,4 Gew.Tl Glycerin / 85 PO / 15 EO, OHZ = 35
Diethyltoluylendiamin	35 Gew.Tl
Diazabicyclooctan	0,5 Gew.Tl
Dibutylzimtdilaurat	0,1 Gew.Tl

15

Semiprepolymer

Polyether	Glycerin / 85 PO / 15 EO , OHZ = 35
Diphenylmethan - 4,4'- Diisocyanat	
NCO-Gehalt 18 %	

20

Das Mischungsverhältnis betrug 100 Gew.Tl Polyol und 107 Gew.Tl Semiprepolymer sowie 20 Gew.Tl Wollastonit im Elastomer. Aus dem so hergestellten Kunststoff wurde ein Kunststoffformteil spritzgegossen und auf seine mechanischen Eigenschaften hin untersucht. Es wurden die nachfolgenden in Tabelle 4
25 angegebenen Ergebnisse erzielt :

Tabelle 4:

	Wollastonit mit Aminosilan	Wollastonit nach Beispiel 1
Shore D Härte nach DIN 53505	63	64
Zugfestigkeit nach DIN 53455	25	25
Bruchdehnung in % nach DIN 53455	100	130
Biege-E-Modul (Mpa) nach DIN 53457	1.600	1.800
Schwindung in % nach DIN 53464	0,5	0,4

Aus der Tabelle ist zu ersehen, daß die mechanischen Eigenschaften des Kunststoffes, in dem das Wollastonit gemäß Beispiel 1 eingesetzt wird, gegenüber den mechanischen Eigenschaften herkömmlicher verstärkter Kunststoffe, überlegen ist.

Beispiel 4

10

Herstellung eines Formteils aus Kunststoff (Polypropylen) mit verstärkendem Füllstoff Wollastonit

Es wird ein Polypropylen Copolymer hergestellt mit einem Anteil von 20 Gew.-% 15 Wollastonit gemäß Beispiel 1 sowie mit einem Vergleichsprodukt, nämlich Wollastonit mit Alkylsilan beschichtet. Aus diesem Material wird ein Kunststoffformteil hergestellt und seine mechanischen Eigenschaften ermittelt. Es wurden die nachfolgenden in Tabelle 5 angegebenen Ergebnisse erzielt:

Tabelle 5:

	Wollastonit mit Alkylsilan	Wollastonit nach Beispiel 1
Zugfestigkeit (MPa) DIN 53455	18,4	19,1
Reißdehnung (%) DIN 53455	30,4	17,9
E-Modul (Gpa) DIN 53457	2,266	2,233
Schlagzähigkeit (Izod) (kJ/m ³)		
ohne Kerbe, Iso 180	50,4	89,0
mit Kerbe, Iso 180	19,0	23,5
Formbeständigkeit in der Wärme	123	115
HDT-B (°C) DIN 53461		

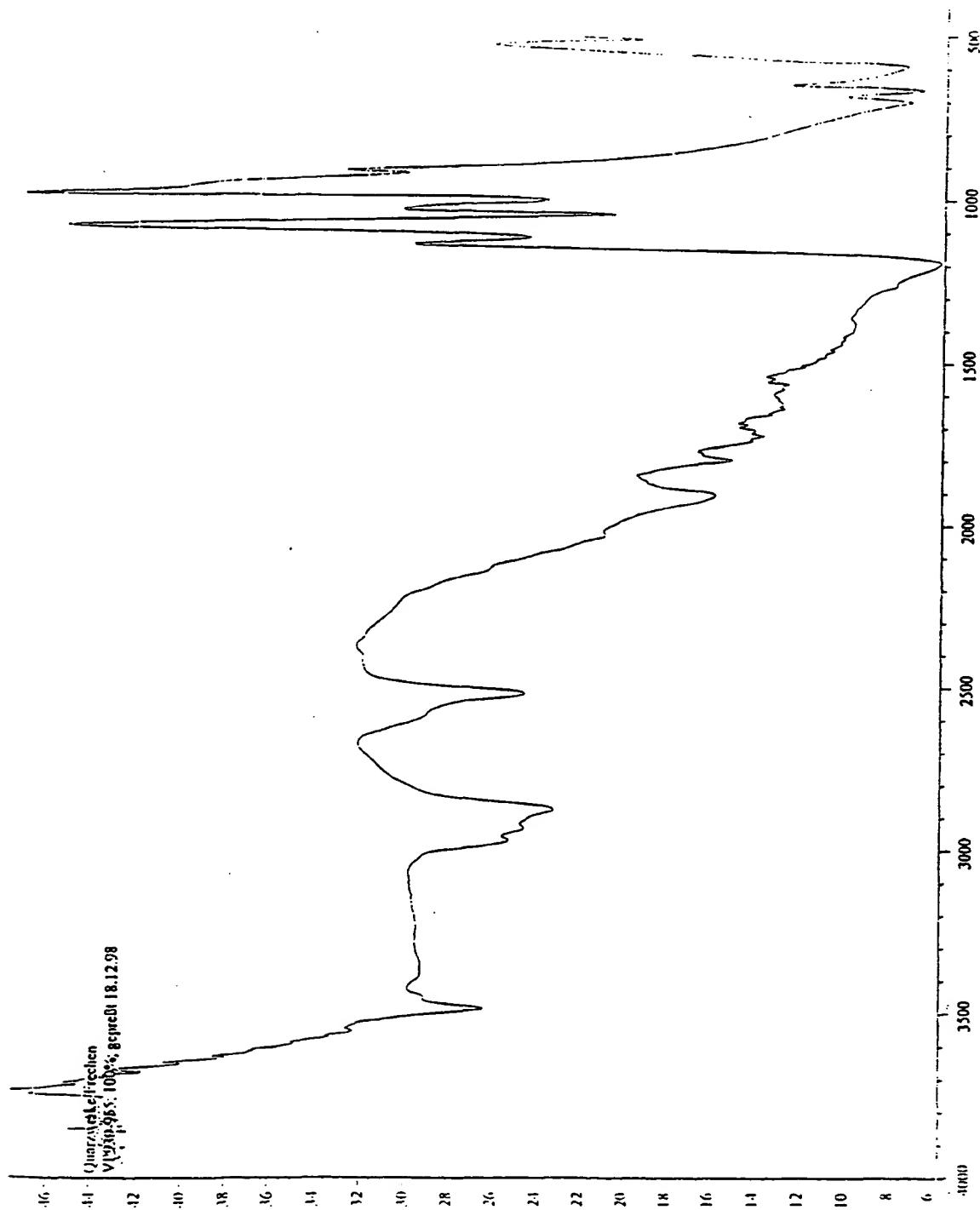
Aus der Tabelle ist zu ersehen, daß die mechanischen Eigenschaften des Kunststoffes, in dem Wollastonit gemäß Beispiel 1 eingesetzt wird, gegenüber herkömmlich verstärktem Polypropylen verbessert sind.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Reduzierung des Staubverhaltens von Silikaten, **dadurch gekennzeichnet**, daß das zerkleinerte Silikat mit einem Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet wird.
5
2. Verfahren nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß für die Beschichtung 0,1 bis 4 Gew.-% eines Polyorganosiloxans eingesetzt werden.
- 10 3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet**, daß für die Beschichtung 0,5 bis 1,5 Gew.-% eines Polyorganosiloxans eingesetzt werden.
4. Verfahren nach den Anprüchen 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet**, daß als
15 Polyorganosiloxan ein Polysiloxan-Polyether-Copolymer eingesetzt wird.
5. Verfahren nach den Anprüchen 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet**, daß als Silikat Calciummetasilikat eingesetzt wird.
- 20 6. Verfahren nach den Anprüchen 1 bis 5, **dadurch gekennzeichnet**, daß als Silikat Wollastonit eingesetzt wird.
7. Silikat mit reduziertem Staubverhalten, **dadurch gekennzeichnet**, daß es mit Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet ist und die folgenden Eigen-
25 schaften aufweist:
 - spezifische Oberfläche (DIN66132-BET) 0,5 bis 1,5 m²/g
 - Staubanteil (nach Heubach) 500 bis 1200 mg/100g
8. Silikat nach Anspruch 7, **dadurch gekennzeichnet**, daß es ein Calciumme-
30 tasilikat ist.

9. Silikat nach Anspruch 7 oder 8, **dadurch gekennzeichnet**, daß es Wollastonit ist.
10. Silikat nach den Ansprüchen 7 bis 9, **dadurch gekennzeichnet**, daß es mit 5 0,1 bis 4 Gew.-% Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet ist.
11. Silikat nach den Ansprüchen 7 bis 10, **dadurch gekennzeichnet**, daß es mit 0,5 bis 1,5 Gew.-% Polyorganosiloxan oberflächenbeschichtet ist.
- 10 12. Silikat nach den Anprüchen 7 bis 11, **dadurch gekennzeichnet**, daß es mit einem Polysiloxan-Polyether-Copolymer oberflächenbeschichtet ist.
13. Verwendung des Silikates nach den Ansprüchen 7 bis 12 als verstärkender Füllstoff in Kunststoffen.
- 15 14. Verwendung nach Anspruch 13 als verstärkender Füllstoff in Kunststoffen ausgewählt aus der Gruppe Polyurethan, Polyamid und Polypropylen.

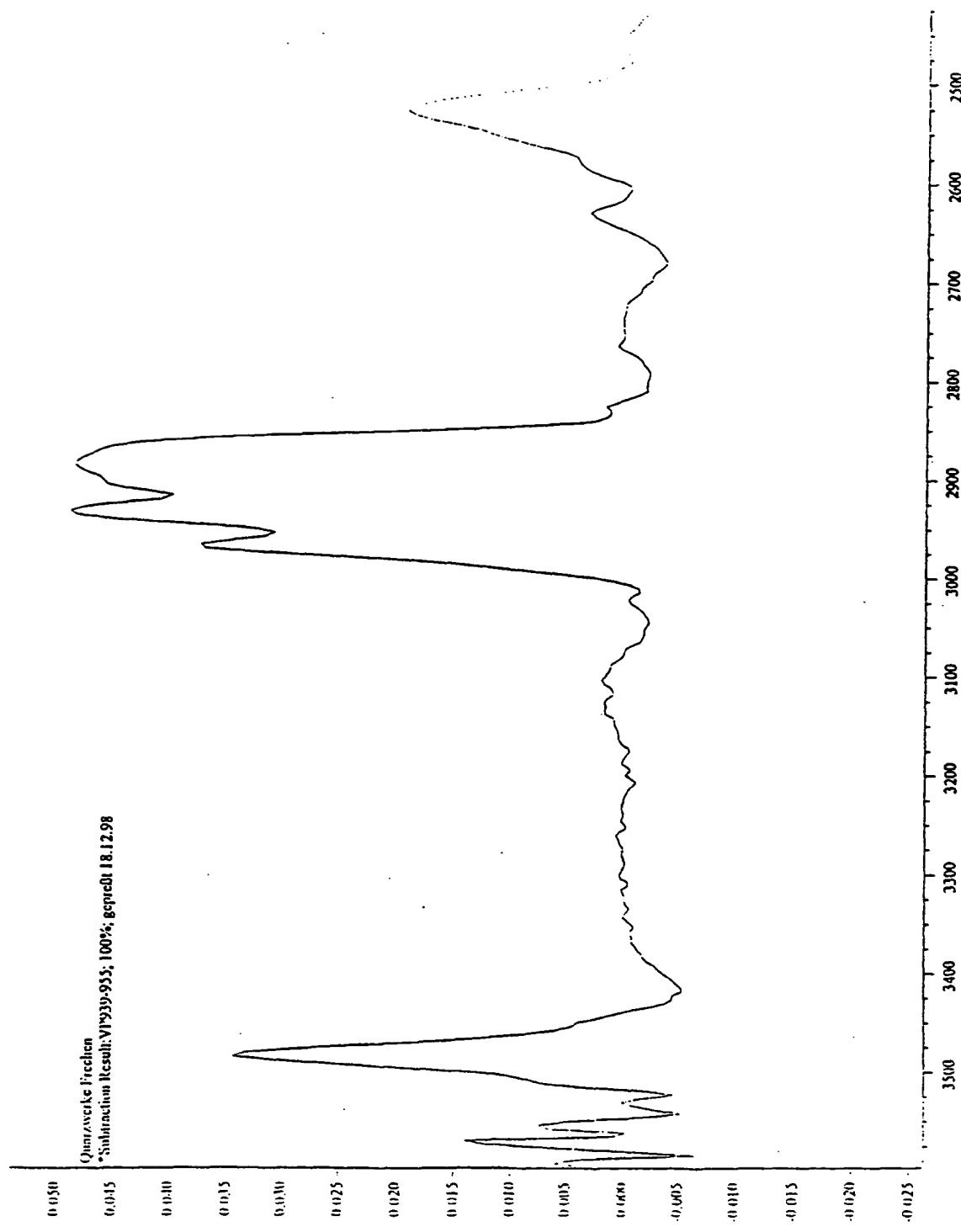
THIS PAGE BLANK (USPTO)



Figur 1

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Figur 2



THIS PAGE BLANK (USPTO)

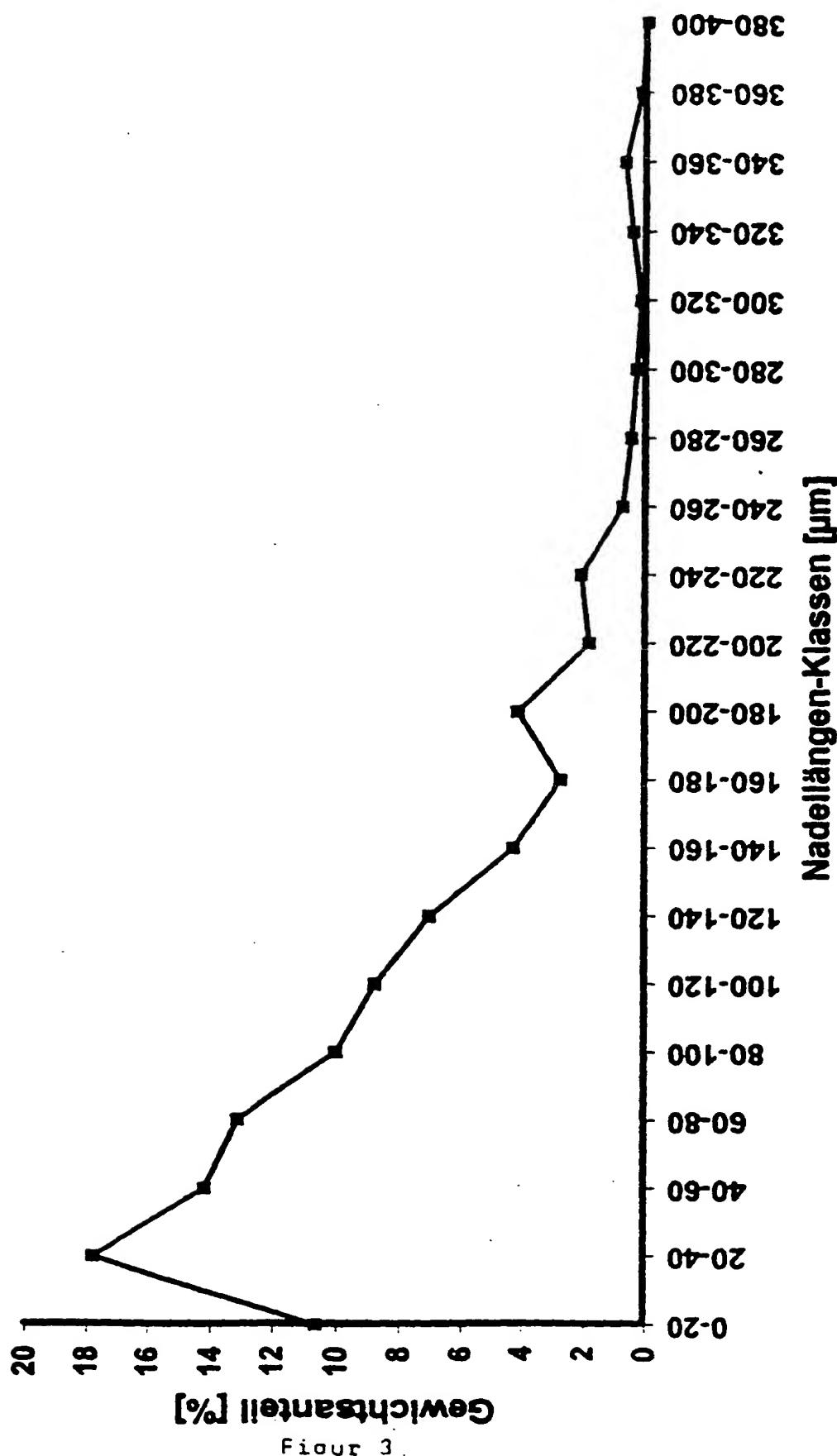
Gewichtsanteil in Abhängigkeit der Nadellänge

Figure 3

THIS PAGE BLANK (USPTO)

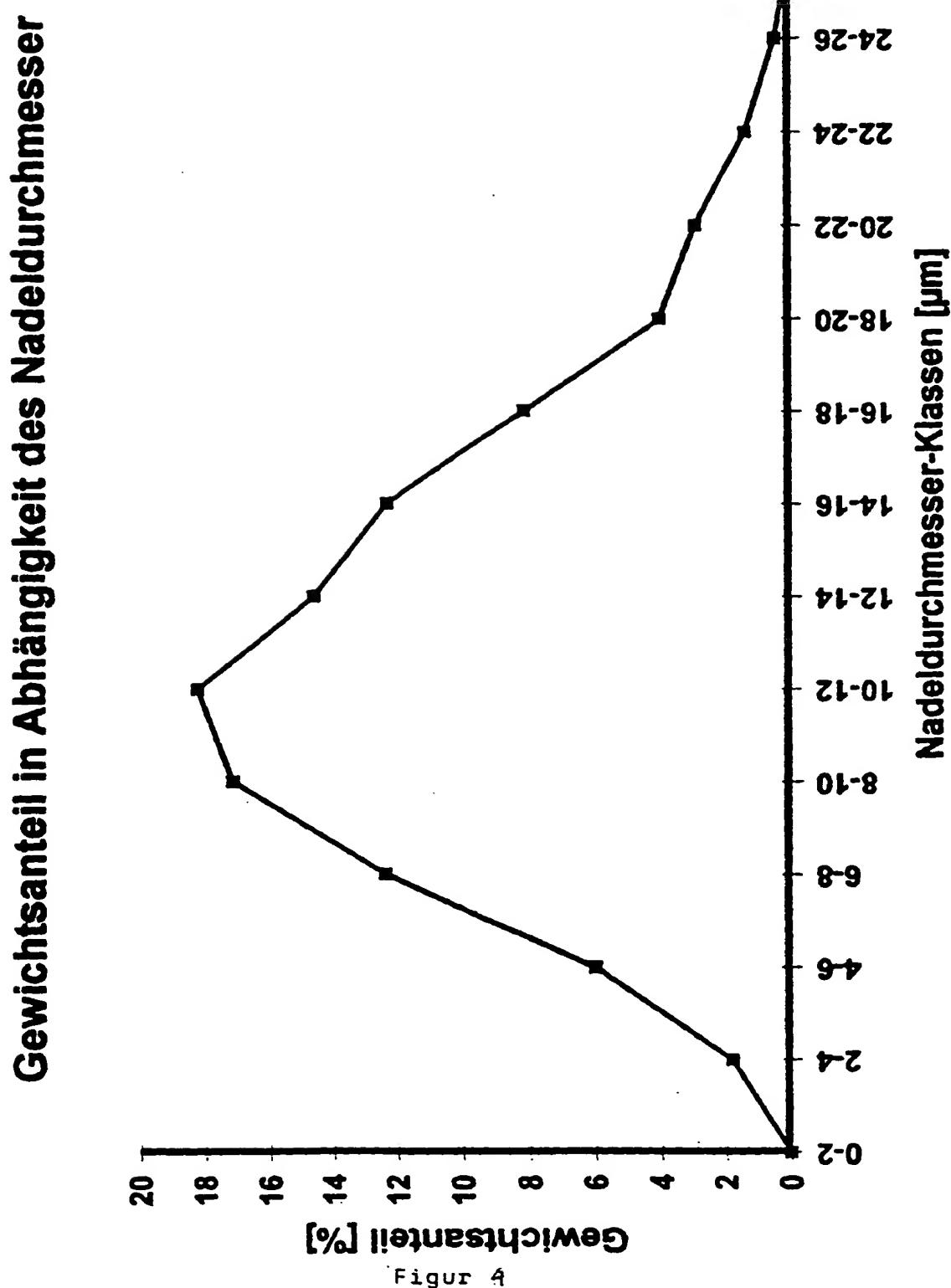
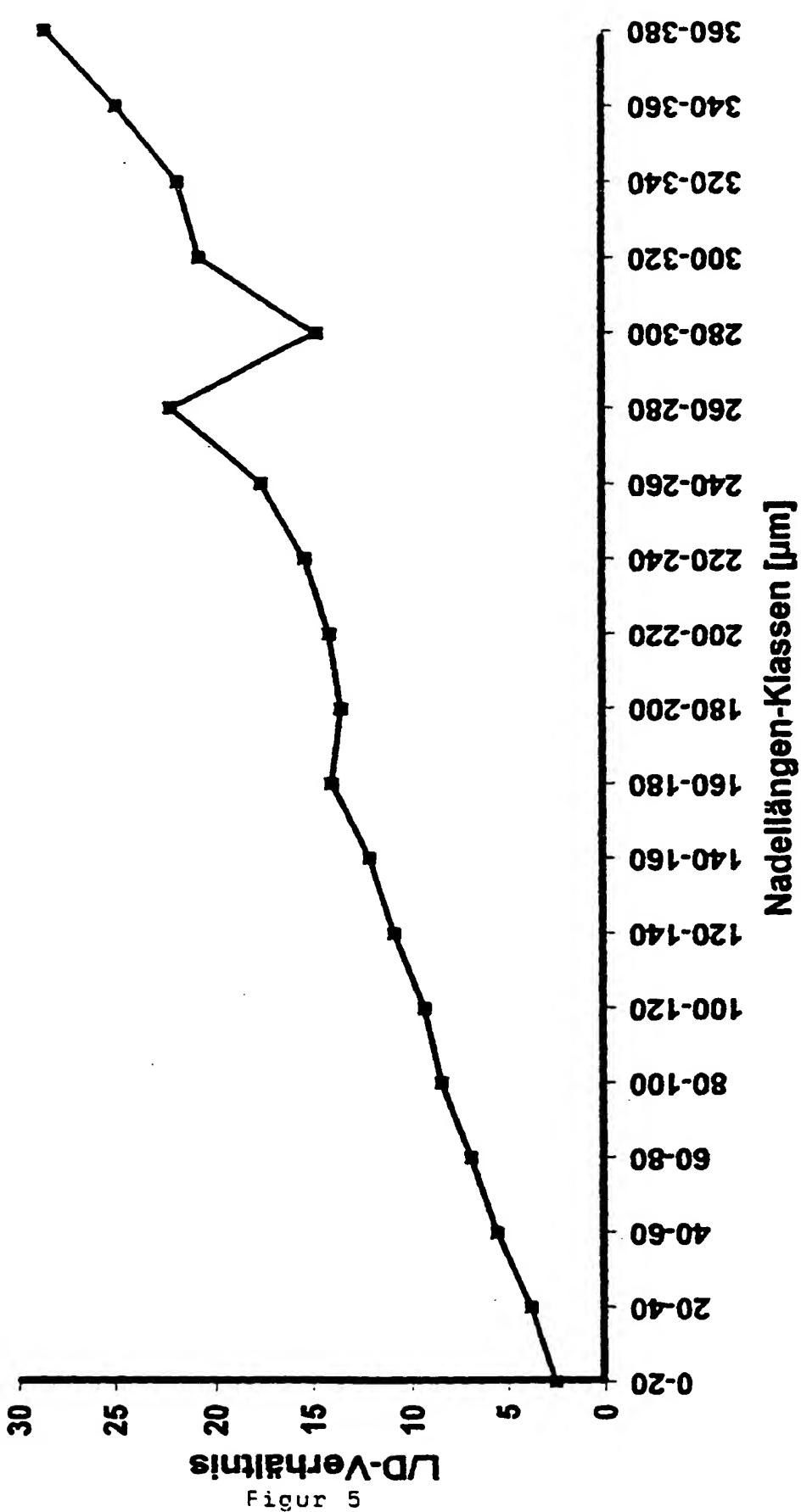


Figure 4

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Mittleres L/D-Verhältnis in Abhängigkeit der Nadellänge

Figur 5

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 00/01616

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 C08K9/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 C08K

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	EP 0 913 431 A (TODA KOGYO CORP) 6 May 1999 (1999-05-06) page 7, line 15 -page 8, line 32 page 11, line 35 - line 54 ---	1-14
X	DE 34 39 745 A (LUGATO CHEMIE DR BUECHTEMANN G) 15 May 1985 (1985-05-15) page 4, paragraph 4 -page 6, paragraph 1 ---	1-3, 5-14
X	US 4 184 880 A (HUBER PETER ET AL) 22 January 1980 (1980-01-22) claim 1 ---	1-3, 5-14
X	EP 0 843 029 A (BAYER AG) 20 May 1998 (1998-05-20) claims 1,2 ---	1-3, 5-12
		-/-

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

° Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

7 July 2000

Date of mailing of the international search report

02/08/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Andriollo, G

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

/EP 00/01616

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 129, no. 7, 17 August 1998 (1998-08-17) Columbus, Ohio, US; abstract no. 82241, METCALFE, E.: "Silicon-based flame retardants" XP002142088 abstract & RECENT ADV. FLAME RETARD. POLYM. MATER., vol. 8, 1997, pages 129-135, ---	1-3,5-12
X	GB 2 284 214 A (GEN ELECTRIC) 31 May 1995 (1995-05-31) page 8, line 10 - line 30 ---	1,7,13, 14
A	EP 0 591 676 A (KIMBERLY CLARK CO) 13 April 1994 (1994-04-13) -----	1,4

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No.

PCT/EP 00/01616

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
EP 0913431	A 06-05-1999	JP 11323174	A	26-11-1999
DE 3439745	A 15-05-1985	NONE		
US 4184880	A 22-01-1980	DE 2641699	A	23-03-1978
		CA 1087336	A	07-10-1980
		FR 2364951	A	14-04-1978
		GB 1564252	A	02-04-1980
		JP 962460	C	20-07-1979
		JP 53042243	A	17-04-1978
		JP 53044504	B	29-11-1978
EP 0843029	A 20-05-1998	DE 19647571	A	20-05-1998
		CN 1184869	A	17-06-1998
		JP 10168657	A	23-06-1998
		US 5969008	A	19-10-1999
GB 2284214	A 31-05-1995	DE 4442158	A	01-06-1995
		FR 2713233	A	09-06-1995
		JP 7216234	A	15-08-1995
EP 0591676	A 13-04-1994	AU 660564	B	29-06-1995
		AU 4893393	A	27-01-1994
		AU 674181	B	12-12-1996
		AU 5357794	A	09-05-1994
		CA 2090793	A	10-04-1994
		CA 2146750	A	28-04-1994
		CN 1089209	A, B	13-07-1994
		CN 1216308	A	12-05-1999
		CN 1225399	A	11-08-1999
		DE 69319607	D	13-08-1998
		DE 69319607	T	05-11-1998
		EP 0663934	A	26-07-1995
		ES 2121098	T	16-11-1998
		JP 6200465	A	19-07-1994
		JP 8502097	T	05-03-1996
		MX 9306259	A	29-04-1994
		WO 9409066	A	28-04-1994
		US 5665803	A	09-09-1997
		ZA 9306315	A	23-03-1994

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

nationales Aktenzeichen

PT/EP 00/01616

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C08K9/06

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C08K

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
P, X	EP 0 913 431 A (TODA KOGYO CORP) 6. Mai 1999 (1999-05-06) Seite 7, Zeile 15 -Seite 8, Zeile 32 Seite 11, Zeile 35 - Zeile 54 ---	1-14
X	DE 34 39 745 A (LUGATO CHEMIE DR BUECHTEMANN G) 15. Mai 1985 (1985-05-15) Seite 4, Absatz 4 -Seite 6, Absatz 1 ---	1-3,5-14
X	US 4 184 880 A (HUBER PETER ET AL) 22. Januar 1980 (1980-01-22) Anspruch 1 ---	1-3,5-14
X	EP 0 843 029 A (BAYER AG) 20. Mai 1998 (1998-05-20) Ansprüche 1,2 ---	1-3,5-12
		-/-

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :	
A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist	*T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist	*X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindenscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden
L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)	*Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindenscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht	*&* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist
P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist	

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

7. Juli 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

02/08/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Andriollo, G

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

DE/EP 00/01616

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 129, no. 7, 17. August 1998 (1998-08-17) Columbus, Ohio, US; abstract no. 82241, METCALFE, E.: "Silicon-based flame retardants" XP002142088 Zusammenfassung & RECENT ADV. FLAME RETARD. POLYM. MATER., Bd. 8, 1997, Seiten 129-135, ---	1-3, 5-12
X	GB 2 284 214 A (GEN ELECTRIC) 31. Mai 1995 (1995-05-31) Seite 8, Zeile 10 - Zeile 30 ---	1, 7, 13, 14
A	EP 0 591 676 A (KIMBERLY CLARK CO) 13. April 1994 (1994-04-13) ----	1, 4

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Europäisches Patentamt
Europäisches Aktenzeichen

T/EP 00/01616

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
EP 0913431 A	06-05-1999	JP	11323174 A	26-11-1999
DE 3439745 A	15-05-1985	KEINE		
US 4184880 A	22-01-1980	DE	2641699 A	23-03-1978
		CA	1087336 A	07-10-1980
		FR	2364951 A	14-04-1978
		GB	1564252 A	02-04-1980
		JP	962460 C	20-07-1979
		JP	53042243 A	17-04-1978
		JP	53044504 B	29-11-1978
EP 0843029 A	20-05-1998	DE	19647571 A	20-05-1998
		CN	1184869 A	17-06-1998
		JP	10168657 A	23-06-1998
		US	5969008 A	19-10-1999
GB 2284214 A	31-05-1995	DE	4442158 A	01-06-1995
		FR	2713233 A	09-06-1995
		JP	7216234 A	15-08-1995
EP 0591676 A	13-04-1994	AU	660564 B	29-06-1995
		AU	4893393 A	27-01-1994
		AU	674181 B	12-12-1996
		AU	5357794 A	09-05-1994
		CA	2090793 A	10-04-1994
		CA	2146750 A	28-04-1994
		CN	1089209 A, B	13-07-1994
		CN	1216308 A	12-05-1999
		CN	1225399 A	11-08-1999
		DE	69319607 D	13-08-1998
		DE	69319607 T	05-11-1998
		EP	0663934 A	26-07-1995
		ES	2121098 T	16-11-1998
		JP	6200465 A	19-07-1994
		JP	8502097 T	05-03-1996
		MX	9306259 A	29-04-1994
		WO	9409066 A	28-04-1994
		US	5665803 A	09-09-1997
		ZA	9306315 A	23-03-1994

THIS PAGE BLANK (USPTO)